Tome 22 N° 4 Avril 1961

LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

LA LONGUEUR DE DIFFUSION D'UNE POUDRE CRISTALLINE, ET LA DÉFORMATION DU SPECTRE DE MAXWELL

Par A. HERPIN et D. SAINT JAMES,
Centre d'Études Nucléaires de Saclay.

Résumé. — On développe un calcul de la longueur de diffusion des poudres cristallines tenant compte de la différence de libre parcours entre les neutrons de longueur d'onde supérieure à la première longueur d'onde de Bragg et les neutrons de longueur d'onde inférieure. Ce calcul permet indirectement de déterminer la valeur de la section efficace de capture. On montre également l'existence d'une déformation du spectre de Maxwell.
Le calcul est appliqué au cas du béryllium et de la glucine.

Abstract. — A calculation of the neutron diffusion length in a crystal is developed. We take into account the difference of mean free path between neutrons of wave length greater than the first Bragg wave length and the neutrons of smaller wawe length. This calculation allows an indirect determination of the absorption cross-section. We show also that the Maxwell distribution suffers a deformation.
The calculation is then applied to the case of beryllium and beryllium oxide.

Le présent article représente un effort que nous avions fait il y a quelques années pour comprendre et expliquer aux spécialistes des piles atomiques les phénomènes de transport des neutrons dans les solides. Cet article est resté longtemps sous forme d'un rapport interne, cependant nous croyons faire œuvre utile en le publiant aujourd'hui.

I. **Introduction.** — La longueur de diffusion, L, est une des grandeurs fondamentales permettant de classer les matériaux de pile atomique utilisés comme ralentisseurs. En effet, elle représente, en symétrie plane, la longueur moyenne parcourue par un neutron à partir d'un plan $x = 0$ avant de disparaître. Les ralentisseurs seront d'autant meilleurs que la longueur de diffusion sera plus grande. Dans la théorie classique du ralentissement L est reliée à deux autres grandeurs fondamentales : le libre parcours moyen de transport λ_{tr} et le libre parcours moyen de capture Λ

$$L = \left(\frac{\lambda_{tr}\,\Lambda}{3}\right)^{1/2} = \left(\frac{1}{3N^2\,\bar{\sigma}_{tr}\,\bar{\sigma}_a}\right)^{1/2} \qquad (1\text{-}1)$$

où $\bar{\sigma}_{tr}$ et $\bar{\sigma}_a$ sont respectivement les sections efficaces microscopiques moyennes de transport et de capture et N le nombre d'atomes par unité de volume.

La longueur de diffusion est une grandeur directement mesurable [1] (*) ; la section efficace de capture dans les milieux faiblement capturants est difficile à déterminer expérimentalement. Pour la calculer il faut connaître la section efficace de transport. Celle-ci peut être soit mesurée directement [2], soit calculée théoriquement

$$\sigma_{tr}(v) = \sigma_{total}(v) - \sigma_{el}(v) < \cos\theta >_{(v)} \qquad (1\text{-}2)$$

où $< \cos\theta >_{(v)}$ représente la valeur moyenne de l'angle de déviation pour un neutron de vitesse v.

Dans le cas d'une poudre cristalline on peut calculer la section efficace élastique [3] ainsi que la valeur de $< \cos\theta >_{(v)}$ (cf. IVe partie de cet article), on peut donc, en théorie, déterminer la section efficace de transport, et connaissant L déduire σ_a.

Dans les corps cristallins, les réflexions élastiques sont commandées par la loi de Bragg. Au-dessus d'une certaine longueur d'onde, ces réflexions n'existent plus, et seules se produisent des chocs inélastiques. La section efficace tombe à une valeur très faible, car elle ne contient plus que les termes inélastiques et de capture. Il était possible de se

(*) Les chiffres entre crochets renvoient à la bibliographie en fin d'article.

demander quel était le comportement des neutrons de longueur d'onde supérieure à la longueur d'onde de coupure, et éventuellement s'il était encore possible de définir une longueur de diffusion. Ce problème a été résolu, et nous avons pu déterminer la déformation du spectre de Maxwell qui en résulte.

Dans une première partie, qui reprend l'essentiel d'un article de J. Horowitz et A. Messiah [5], et le complète, on traite le cas d'un milieu homogène. Le cas particulier des poudres cristallines est envisagé dans la troisième partie. Pour terminer le calcul est appliqué au cas du beryllium et de la glucine.

II. La longueur de diffusion d'un milieu homogène diffusant faiblement capturant. — Dans ce qui suit nous allons supposer une distribution de neutrons dans un milieu homogène, diffusant et faiblement capturant en agitation thermique. Nous prendrons le cas de la symétrie plane et nous essaierons de trouver la forme asymptotique de la diffusion des neutrons.

Comme nous cherchons à déterminer essentiellement une longueur de diffusion nous supposons que la densité de neutrons a pour forme asymptotique

$$e^{-\omega x} f(v) \qquad (2\text{-}1)$$

où le spectre $f(v)$ est indépendant de la position et ω est une constante indépendante de la vitesse. La longueur de diffusion est l'inverse de ω.

Une telle forme asymptotique n'est pas du tout obligatoire. Dans la limite du modérateur de masse infinie la vitesse des neutrons reste constante au cours de la collision et le problème se réduit à une superposition de problèmes à une vitesse ; à chaque vitesse du neutron correspond une longueur de diffusion $L(v)$, donnée par $\omega(v) = \sqrt{3\Sigma(v)\,\Sigma_a(v)}$ et l'expression asymptotique prend la forme $e^{-\omega x} f(v)$; $f(v)$ étant la densité au point $x = 0$.

(Σ représente la section efficace macroscopique : $\Sigma = N\sigma$).

Dans ce cas extrême il n'est pas possible de parler d'une longueur de diffusion, cela tient au fait qu'il n'y a pas d'échange d'énergie entre les neutrons et le milieu diffuseur de sorte que le spectre initial n'est déformé que par la capture.

Dans la limite d'une capture nulle, au contraire, il existe, à une distance suffisante de la source, un spectre de vitesse Maxwellien $M(v)$ correspondant à l'équilibre thermique. La densité cherchée est en fait $M(v)$; elle correspond à une longueur de diffusion infinie. La densité à la forme (2-1), avec $\omega = 0$.

Les deux cas considérés ci-dessus sont les limites de deux situations opposées. La première est celle où le pouvoir de ralentissement $\xi\Sigma_{sc}$ est beaucoup plus petit que la section efficace d'absorption Σ_a de sorte que le neutron n'a pratiquement pas le temps de modifier sa vitesse avant d'être capturé. La seconde est la limite du cas

$$\Sigma_a \ll \xi\,\Sigma_{sc} \qquad (2\text{-}2)$$

Σ_{sc} est la section efficace de diffusion.

Dans ce cas, le neutron échange suffisamment d'énergie avec le diffuseur avant sa capture et un certain équilibre thermique peut se réaliser. C'est dans ce cas que l'on s'attend à une densité du type (1), avec une longueur de diffusion $1/\omega$ que nous allons essayer de déterminer. Dans le cas d'un cristal, la masse des atomes diffusant peut être considérée comme infinie mais il existe également des collisions inélastiques qui se produisent avec échange d'un ou plusieurs phonons, si bien que les vitesses des neutrons sont modifiables.

Loin des sources nous pouvons écrire une équation donnant le bilan des neutrons de vitesse v : c'est l'équation intégro-différentielle de Boltzmann-Lorentz

$$\boldsymbol{v}.\mathbf{grad}\, D(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{v}) + v\,\Sigma(v)\,D(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{v}) - \int P(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})\,D(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{v}')\,d\boldsymbol{v} = 0. \qquad (2\text{-}3)$$

En symétrie plane, nous aurons :

$$v\,\mu\frac{\partial}{\partial x} D(x, \boldsymbol{v}) + v\,\Sigma(v)\,D(x, \boldsymbol{v}) - \int P(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})\,D(x, \boldsymbol{v}')\,d\boldsymbol{v}' = 0$$

$D(x, \boldsymbol{v})$: est la densité en phase,
v : est la vitesse du neutron,
μ : le cosinus de l'angle de v avec l'axe des x.

Dans le deuxième terme qui représente la disparition des neutrons par chocs, $\Sigma = \Sigma_a + \Sigma_{sc}$ et $\Sigma_{sc} = \Sigma_{el} + \Sigma_{ine}$ somme de la section efficace élastique et inélastique macroscopique, Σ représente donc la section efficace macroscopique totale, et nous la supposerons corrigée de l'effet Doppler (négligeable dans le cas d'un cristal car la masse apparente est pratiquement infinie).

Le troisième terme représente l'apparition des neutrons de vitesse $\boldsymbol{v}$ par choc. $P(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})$ représente le noyau de la loi de choc.

$P(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})$ possède deux propriétés remarquables : la première exprime que $M(v)$ est solution de l'équation (2-4) si la capture est nulle :

$$v\,\Sigma_{sc}(v)\,M(v) = \int P(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})\,M(v')\,d\boldsymbol{v}' \qquad (2\text{-}5)$$

la seconde, dont la première est une conséquence, est l'expression du principe de micro-réversibilité :

$$P(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})\,M(v') = P(\boldsymbol{v}, \boldsymbol{v}')\,M(v). \qquad (2\text{-}6)$$

De plus, nous pouvons écrire que :

$$v\,\Sigma_{sc}(v) = \int P(\boldsymbol{v}, \boldsymbol{v}')\,d\boldsymbol{v}'. \qquad (2\text{-}7)$$

Les intégrales sont étendues à toutes les valeurs de $\boldsymbol{v}$ ou de $\boldsymbol{v}'$.

A. Résolution le l'équation de Boltzmann-Lorentz sans transport. — Nous faisons l'hypothèse simplificatrice que $P(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})$ ne dépend que des grandeurs de $\boldsymbol{v}$ et $\boldsymbol{v}'$ et non de leurs directions. Physiquement cela suppose la diffusion isotrope dans le système du laboratoire, ce qui aboutit à négliger tout effet de transport.

L'équation s'écrit :

$$v \mu \frac{\partial}{\partial x} D(x, \boldsymbol{v}) + D(x,) \boldsymbol{v} \left[v \Sigma_a + \int P(v, v')\, dv' \right]$$
$$- \frac{1}{4\pi} \int P(v', v)\, D(x, \boldsymbol{v}')\, d\boldsymbol{v}' = 0. \quad (2\text{-}8)$$

On a posé

$$P(v', v) = 4\pi\, P(\boldsymbol{v}', v).$$

Pour résoudre cette équation, nous allons supposer la densité développable en polynômes de Legendre. Soit

$$D(x, \boldsymbol{v}) = D_0(x, v) + \mu D_1(x, v)$$
$$+ \ldots + P_l D_l(x, v) + \ldots \quad (2\text{-}9)$$

a) *Résolution de l'équation* (2-8) *par une méthode à un seul harmonique.* — Supposons maintenant la distribution $D(x, \boldsymbol{v})$ suffisamment isotrope pour que nous puissions ne retenir que les deux premiers termes.

On a

$$D(x, \boldsymbol{v}) = D_0(x, v) + \mu D_1(x, v). \quad (2\text{-}10)$$

L'équation de Boltzmann-Lorentz sans transport devient

$$v \mu \frac{\partial}{\partial x} [D_0(x, v) + \mu D_1(x, v)]$$
$$+ [D_0(x, v) + \mu D_1(x, v)] \left[v \Sigma_a + \int P(v, v')\, dv' \right]$$
$$- \int P(v', v)\, D_0(x, v')\, dv' = 0. \quad (2\text{-}11)$$

Par une manipulation analogue à la théorie élémentaire classique (intégration en μ de (2-11), multiplication de (2-11) par μ et intégration), on élimine $D_1(x, v)$ et μ. Il vient :

$$- \frac{v}{3\Sigma} \frac{\partial^2}{\partial x^2} D_0(x, v) + v \Sigma_a D_0(x, v) + D_0(x, v)$$
$$\int P(v, v')\, dv' - \int P(v', v)\, D_0(x, v')\, dv' = 0 \quad (2\text{-}12)$$

Si nous cherchons pour $D_0(x, \boldsymbol{v})$ une solution de la forme $e^{-\omega x} D(v)$ nous sommes ramenés au problème de valeur propre :

$$- \frac{\omega^2}{3\Sigma} v D(v) + v \Sigma_a D(v) + D(v) \int P(v, v')\, dv'$$
$$- \int P(v', v)\, D(v')\, dv' = 0. \quad (2\text{-}13)$$

α) *Calcul direct de* ω. — Intégrons l'équation (2-13) en v, sur toute l'étendue des vitesses :

$$- \frac{\omega^2}{3} \int \frac{v D(v)}{\Sigma(v)}\, dv + \int v \Sigma_a(v)\, D(v)\, dv$$
$$+ \int D(v)\, dv \int P(v, v')\, dv' - \iint P(v', v)\, D(v')\, dv' = 0. \quad (2\text{-}14)$$

Les deux intégrales doubles étant égales il vient :

$$\frac{1}{L^2} = \omega^2 = 3 \frac{\int \Sigma_a(v)\, \Phi(v)\, dv}{\int \frac{\Phi(v)}{\Sigma(v)}\, dv} = \frac{3 < \Sigma_a >}{< \frac{1}{\Sigma} >} \quad (2\text{-}15)$$

où $\Phi(v) = vD(v)$ représente le flux des particules de vitesse v. Cette équation équivaut à la relation (1-1).

On voit donc que pour calculer la longueur de diffusion on devra faire la moyenne de la section efficace de capture pondérée par le flux, ainsi que celle de *l'inverse* de la section efficace *totale* pondérée par le flux. La longueur de diffusion correspondant à la valeur de ω la plus petite possible, on voit que l'expression (2-15) sera valable à une distance infiniment grande pour que dans $\Phi(v)$ on puisse négliger l'influence de racines supérieures à ω. (2-15) suppose que l'on connaisse $\Phi(v)$ ce qui n'est généralement pas le cas ; nous allons donc donner une autre manière de calculer ω.

β) *Calcul de* ω *par une méthode variationnelle.* — Dans l'équation (2-13) l'opérateur intégral agissant sur $D(v')$ n'est pas symétrique. Effectuons le changement de fonction

$$D(v) = 4\pi \sqrt{\frac{M(v)\, \Sigma(v)}{v}}\, \Phi(v) \quad (2\text{-}16)$$

il vient :

$$\frac{\omega^2}{3} \Phi(v) = \int K(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})\, \Phi(v')\, d\boldsymbol{v}' \quad (2\text{-}17)$$

et le noyau,

$$K(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v}) = \Sigma^2\, \delta(\boldsymbol{v}' - \boldsymbol{v})$$
$$- \sqrt{\frac{\Sigma(v)}{v M(v)}}\, P(v', v) \sqrt{\frac{\Sigma(v')\, M(v')}{v'}} \quad (2\text{-}18)$$

est symétrique comme conséquence du principe de micro-réversibilité (équation (2-6)).

$\omega^2/3$ est la valeur propre correspondant à la fonction propre $\Phi(v)$ de l'opérateur intégral de noyau symétrique K, on a donc l'expression *stationnaire.*

$$\frac{\omega^2}{3} = \frac{\iint \Phi(v)\, K(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})\, \Phi(v')\, d\boldsymbol{v}\, d\boldsymbol{v}'}{\int \Phi^2(v)\, dv}. \quad (2\text{-}19)$$

En prenant pour $\varphi(v)$ une fonction assez voisine de la solution rigoureuse, on aura $\omega^2/3$ sans grande erreur. Une bonne fonction d'essai est celle qui correspond à la solution rigoureuse à capture nulle c'est-à-dire à la distribution $M(v)$

Soit

$$\Phi(v) = (1/4\pi)\sqrt{vM(v)/\Sigma(v)}.$$

L'intégration du numérateur de (2-19) est immédiate (cf. 2,5) et il vient :

$$\omega^2 = \frac{1}{L^2} = 3\frac{\int v\,\Sigma_a(v)\,M(v)\,dv}{\int \frac{vM(v)}{\Sigma(v)}\,dv} \qquad (2\text{-}20)$$

(2-20) est équivalente à (2-15) ou l'on a fait $vM(v) = \Phi(v)$ mais ici nous voyons que dans le cas d'une capture faible nous pouvons prendre le spectre de Maxwell comme représentant la distribution neutronique et ne commettre sur ω qu'une erreur du second ordre.

b) *Résolution de l'équation de Boltzmann dans le cas ou D ne peut être considéré comme presque isotrope.* — Revenons maintenant à l'équation de Boltzmann sous sa forme (2-8).

α) *Résolution de l'équation* (2-8) *par une méthode à n harmoniques.* — Développons $D(x, v)$ selon l'équation (2-9) et bornons nous au l^{ieme} terme. Il vient :

$$v\mu\frac{\partial}{\partial x}[D_0(x,v) + \dots + P_l D_l(x,v)] + v\Sigma[D_0(x,v) + \dots + P_l D_l(x,v)] - \int P(v',v)\,D_0(x,v')\,dv' = 0.$$

En appliquant la relation de récurrence des polynômes de Legendre :

$$\mu P_n = \frac{n+1}{2n+1}P_{n+1} + \frac{n}{2n+1}P_{n-1} \quad \text{il vient}$$

$$v\frac{\partial}{\partial x}\mathop{S}_{n=0}\left[\frac{n+1}{2n+3}D_{n+1}(x,v) + \frac{n}{2n-1}D_{n-1}(x,v)\right]P_n(\mu) + v\Sigma\mathop{S}_{n=0}P_n(\mu)\,D_n(x,v) - \int P(v',v)\,D_0(x,v')\,dv' = 0. \qquad (2\text{-}22)$$

En multipliant par P_n, $n = 0, 1 \dots$ et en intégrant il vient $l+1$ équations

$$\left\{\begin{aligned} & D_{l+1} = 0 \\ & v\frac{\partial}{\partial x}\left[\frac{l}{2l-1}D_{l-1}(x,v)\right] + v\Sigma D_l(x,v) = 0 \\ & \vdots \\ & v\frac{\partial}{\partial x}\left[\frac{n}{2n+3}D_{n+1}(x,v) + \frac{n}{2n-1}D_{n-1}(x,v)\right] + v\Sigma D_n(x,v) = 0 \qquad (2\text{-}23) \\ & \vdots \\ & v\frac{\partial}{\partial x}\frac{1}{3}D_1(x,v) + v\Sigma D_0(x,v) - \int P(v',v)\,D_0(x,v')\,dv' = 0. \end{aligned}\right.$$

Si on cherche une solution de la forme :

$$D_n(x, v) = D_n(v)\,e^{-\omega x}$$

$\partial/\partial x$ sera remplacé par $-\omega$ et on pourra éliminer tous les D_n jusqu'à D_1 et D_0 exclus. Il vient

$$D_1 = \cfrac{\frac{\omega}{\Sigma}}{1 - \cfrac{\frac{\omega^2}{\Sigma^2}\times\frac{9}{35}}{1 - \cfrac{\cdot}{\cdot\;\cdot\;1 - \frac{\omega^2}{\Sigma^2}\frac{l^2}{(2l+1)(2l-1)}}}}.$$

Si nous ne nous étions pas bornés au l^{ieme} terme nous aurions eu une fraction continue dont le terme de rang n est : $\dfrac{\omega^2}{\Sigma^2}\dfrac{n^2}{(2n+1)(2n-1)}$. L'équation finale s'écrit

$$-\frac{v}{3}\frac{\omega^2}{\Sigma}\left[\frac{1}{1 - \frac{\omega^2}{\Sigma^2}\times\frac{4}{15}\cdots}\right]D_0(v) + v\Sigma D_0(v)\int P(v',v)\,D_0(v')\,dv' = 0. \qquad (2\text{-}24)$$

On peut montrer que :

$$\Sigma - \frac{\omega}{3\Sigma}\left[\frac{1}{1 - \frac{\omega^2}{\Sigma^2}\times\frac{4}{15}\cdots}\right] = \frac{2\omega}{\mathrm{Log}\,\frac{\Sigma+\omega}{\Sigma-\omega}}.$$

Nous allons retrouver ces résultats par un calcul plus direct de ω.

β) *Résolution de l'équation de Boltzmann par une méthode directe.* — L'équation (2-8) n'est qu'un cas particulier de l'équation (2-3). On peut l'écrire sans tenir compte de la symétrie plane :

$$\boldsymbol{v}.\mathbf{grad}\,D(\boldsymbol{r},\boldsymbol{v}) + v\Sigma(v)\,D(\boldsymbol{r},\boldsymbol{v}) = \frac{1}{4\pi}\int P(v',v)\,D(\boldsymbol{r},\boldsymbol{v}')\,dv'\,d\Omega' \qquad (2\text{-}25)$$

avec

$$\int D(\boldsymbol{r},\boldsymbol{v})\,d\Omega = D(\boldsymbol{r},v)\,; \quad \boldsymbol{v} = \boldsymbol{\Omega}v\,; \quad |\boldsymbol{\Omega}|^2 = 1$$

$d\Omega$ est l'élément d'angle solide. On sait que l'équation :

$$\boldsymbol{\Omega}.\mathbf{grad}\,D + \Sigma D = f(\boldsymbol{r},v)$$

équivaut à l'équation :

$$D(\boldsymbol{r},\boldsymbol{\Omega}v) = \int_0^\infty f(\boldsymbol{r} - s\boldsymbol{\Omega}, v)\,e^{-\Sigma(v)s}\,ds$$

l'intégration se faisant sur la demi-droite issue de $\boldsymbol{r}$ en sens opposé à $\boldsymbol{\Omega}$.

L'équation (2-25) est donc équivalente à

$$D(\boldsymbol{r}, v) = \frac{1}{4\pi v}\int_0^\infty \mathrm{d}s\, \mathrm{e}^{-\Sigma(v)s} \int_0^\infty D(\boldsymbol{r} - s\,\boldsymbol{\Omega}, \boldsymbol{v}')\, P(v', v)\, \mathrm{d}v' \frac{\mathrm{d}\Omega'}{4\pi}. \quad (2\text{-}26)$$

Soit par intégration sur Ω :

$$D(\boldsymbol{r}, v) = \frac{1}{4\pi v}\int \mathrm{d}\Omega \int^\infty \mathrm{e}^{-\Sigma(v)s}\, \mathrm{d}s \int_0^\infty D(\boldsymbol{r} - s\,\boldsymbol{\Omega}, \boldsymbol{v}')\, P(v', v)\, \mathrm{d}v'. \quad (2\text{-}27)$$

On cherche une solution de (2-27) sous la forme :

$$D(\boldsymbol{r}, v) = D(v)\, \mathrm{e}^{-\omega x}$$

(c'est-à-dire que nous rétablissons ici la symétrie plane) :

Désignons par μ la composante de $\boldsymbol{\Omega}$ sur x il vient :

$$D(\boldsymbol{r} - s\,\boldsymbol{\Omega}, \boldsymbol{v}') = D(v) \exp[-\omega x + \omega s \mu].$$

En reportant dans (2-27) $\mathrm{e}^{-\omega x}$ s'élimine et on obtient l'équation sur ω :

$$D(v) = \frac{1}{v}\int \mathrm{d}\Omega \int_0^\infty \mathrm{d}s\, \mathrm{e}^{-(\Sigma - \omega\mu)s} \int_0^\infty D(v')\, P(v', v)\, \mathrm{d}v' \quad (2\text{-}28)$$

$$\mathrm{d}\Omega = 2\pi\, \mathrm{d}\mu$$

$$\int_0^\infty \mathrm{e}^{-(\Sigma - \omega\mu)s}\, \mathrm{d}s = \frac{1}{\Sigma - \omega\mu} \quad \text{si} \quad \Sigma - \omega\mu > 0.$$

Or il faut $|\mu| \leqslant 1$ ce qui entraîne $\Sigma - \omega > 0$. Dans ce cas :

$$D(v) = \frac{1}{2v}\int \frac{\mathrm{d}\mu}{\Sigma - \omega\mu} \int_0^\infty D(v')\, P(v', v)\, \mathrm{d}v'. \quad (2\text{-}29)$$

Soit :

$$D(v) = \frac{1}{2v\omega} \operatorname{Log} \frac{\Sigma + \omega}{\Sigma - \omega} \int_0^\infty D(v')\, P(v', v)\, \mathrm{d}v'. \quad (2\text{-}30)$$

Si l'on pose $x = (\omega / \Sigma) < 1$ l'équation (2-30) prend la forme

$$\frac{1}{2} \operatorname{Log} \frac{1 + x}{1 - x} = ax \quad \text{où} \quad a = \frac{\Sigma(v)\, v\, D(v)}{\int P(v', v)\, D(v')\, \mathrm{d}v} \quad (2\text{-}31)$$

cette équation a une racine avec $0 < x < 1$ si $a > 1$.

Dans le cas de la distribution de Maxwell $a = \Sigma / \Sigma_{sc}$ est bien supérieur à 1. Remarquons cependant que $D(v)$ ne peut être la distribution maxwellienne, en effet ω doit être indépendant de v, ce qui n'est pas réalisé. Dans le cas de la capture nulle on retrouve la valeur $\omega = 0$ en prenant le spectre de Maxwell pour $D(v)$.

La condition $\Sigma - \omega > 0$ est très importante car elle conditionne la validité du développement en harmoniques. Si $\omega \geqslant \Sigma$, la méthode n'est plus justifiée et en particulier il n'est plus possible d'utiliser le premier harmonique comme il a été fait à l'alinéa *a*).

B. Résolution de l'équation de Boltzmann-Lorentz avec transport. — Examinons maintenant les corrections de transport. Nous supposons évidemment que la condition de convergence est remplie. La loi de choc $P(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})$ ne peut être considérée comme isotrope. Donnons lui la forme $P(v', v\,; \mu_0)$, dépendant à la fois des grandeurs des vitesses initiale et finale et de l'angle qu'elles font entre elles (*) μ_0 désigne le cosinus de cet angle. On peut développer P en polynômes de Legendre :

$$P(v', v\,; \mu_0) = P_0(v', v) + \mu_0\, P_1(v', v) + \ldots \quad (2\text{-}32)$$

Les propriétés de micro-réversibilité (2-5) et l'équation (2-7) restent toujours valables. Le traitement exposé ci-dessus fondé sur la quasi isotropie de la densité en phase, et non l'isotropie de la loi de choc peut être utilisé. Il conduira donc à une équation analogue à l'équation (2-13) pour D_0.

$$\frac{1}{3}\frac{\partial^2}{\partial x^2} D_0 = Q_1\, Q_0\, D_0 \quad (2\text{-}33)$$

où Q_1 et Q_0 sont des opérateurs intégraux de noyaux respectifs :

$$\Sigma(v)\, \delta(\boldsymbol{v}' - \boldsymbol{v}) - \frac{\mu_0^2}{v} P_1(v', v)$$

et

$$\Sigma(v)\, \delta(\boldsymbol{v}' - \boldsymbol{v}) - \frac{1}{v} P_0(v' - v).$$

Supposons que $P(v', v)$ présente un maximum aigu si $v' = v$ et que l'on puisse remplacer : l'opération :

$$\int \frac{\mu_0^2}{v} P_1(v', v)\, \mathrm{d}\boldsymbol{v}'$$

par :

$$I(v)\, g(v) = g(v) \int \frac{\mu_0^2}{v} P_1(v', v)\, \mathrm{d}\boldsymbol{v}'.$$

Le sens physique de l'intégrale $I(v)$ est clair :

$$I(v) \equiv \int \frac{\mu_0^2}{v} P_1(v', v)\, \mathrm{d}\boldsymbol{v}' = \frac{1}{2v}\int \mu_0\, P(v', v\,; \mu_0)\, \mathrm{d}\boldsymbol{v}' = \Sigma_{sc} < \mu_0 >$$

où $< \mu_0 >$ est le cosinus moyen de l'angle de déflection dans le choc. L'opération Q_1 se réduit alors à une simple multiplication par la section efficace de transport :

$$\Sigma_{tr}(v) = \Sigma(v) - \Sigma_{sc}(v) < \mu_0 >$$

(*) Ce n'est pas la loi de choc la plus générale. En milieu cristallin la loi de choc peut aussi dépendre des directions des vitesses relativement aux directions principales du cristal. Ce cas est traité au chapitre III § B.

et l'équation (2-23) prend la forme :

$$\frac{1}{3}\frac{\partial^2}{\partial x^2}D_0(x, v) = \Sigma_{tr}(v)\,\Sigma(v)\,D_0(x, v) - \frac{\Sigma_{tr}(v)}{v}\int P_0(v', v)\,D_0(x, v')\,dv'. \quad (2\text{-}24)$$

Le traitement se poursuit de manière identique. L'expression (2-20) reste vraie si on remplace Σ par Σ_{tr}.

$$\frac{\omega^2}{3} = \frac{\int v\,\Sigma_a(v)\,M(v)\,dv}{\int \frac{vM(v)}{\Sigma_{tr}(v)}\,dv}. \quad (2\text{-}25)$$

Équation identique à (1-1).

III. **La longueur de diffusion d'une poudre cristalline.** — Nous avons vu précédemment que la condition de convergence du développement en polynômes de Legendre peut s'exprimer par la relation

$$\omega < \Sigma(v).$$

On sait que dans le cas des poudres cristallines, il existe une vitesse des neutrons au-dessous de laquelle il ne peut y avoir de chocs élastiques, car la condition de Bragg ne peut être remplie. La section efficace possède une coupure et tombe à une valeur très petite. Il sera donc possible d'avoir des valeurs de ω, qui, calculées sans précautions, seraient égales ou supérieures à $\Sigma(v)$.

Dans le cas du beryllium par exemple si on calcule ω par la formule (2-20) on trouve une valeur de 0,457 barns. La section efficace au-dessous de la coupure est de l'ordre de 0,46, la condition de convergence est mal remplie. Ce phénomène résulte du fait que les neutrons « lents », c'est-à-dire ceux dont la vitesse est inférieure à la vitesse de coupure ($v < v_c$), se comportent différemment des neutrons « rapides » ($v > v_c$), et, en particulier, ont un libre parcours incomparablement plus grand. Il est donc nécessaire d'envisager une loi de chocs différente pour les deux groupes de neutrons.

A. Établissement et résolution d'une équation dans le cas de deux groupes de neutrons. — Comme il a été suggéré ci-dessus, il est naturel de séparer les neutrons en deux groupes. Nous repèrerons les neutrons « lents » ($v < v_c$) par l'indice « l » les neutrons « rapides » ($v > v_c$) par l'indice « r ».

Le libre parcours des neutrons lents est déterminé par leur section efficace de capture et par leur section efficace inélastique. Nous supposerons, ce qui est assez bien vérifié expérimentalement pour les neutrons de faibles vitesses (*), que les chocs inélastiques font passer les neutrons du groupe lent au groupe rapide. De plus, nous ne restreignons pas la généralité en supposant que les neutrons lents sont issus de neutrons rapides par chocs inélastiques.

Les chocs inélastiques peuvent être considérés comme isotropes. Il est donc légitime d'envisager la distribution des neutrons « lents » comme isotrope. Nous ne particulariserons donc pas la direction de la vitesse des neutrons lents, et nous définirons une section efficace macroscopique de passage de la vitesse v_l à la vitesse $\boldsymbol{v}_r$,

$$X(v_l, \boldsymbol{v}_r)$$

telle que :

$$\int_R X(v_l, \boldsymbol{v}_r)\,d\boldsymbol{v}_r = \int_{v_c}^{\infty} X(v_l, v_r)\,dv_r = \Sigma_l^R \quad (3\text{-}1)$$

où Σ_l^R représente la section efficace macroscopique, inélastique *totale* des neutrons de vitesse v_l.

Ces neutrons ont donc un libre parcours λ_l tel que :

$$\frac{1}{\lambda_l} = \alpha_l = \Sigma_{a.l} + \Sigma_l^R. \quad (3\text{-}2)$$

Écrivons maintenant le bilan des neutrons « rapides » de vitesse v_l (en symétrie plane).

$$v_r\,\mu\frac{\partial}{\partial x}D(x, \boldsymbol{v}_r) + v_r\Sigma\,D(x, \boldsymbol{v}_r) - \int_R P(\boldsymbol{v}'_r, \boldsymbol{v}_r)\,D(x, \boldsymbol{v}'_r)\,d\boldsymbol{v}'_r - \int_L S_l\,dv_l = 0. \quad (3\text{-}3)$$

Les deux premiers termes sont identiques à ceux de l'équation de Boltzmann-Lorentz discutée plus haut dans le cas général. Les deux derniers termes remplacent le troisième terme de cette équation.

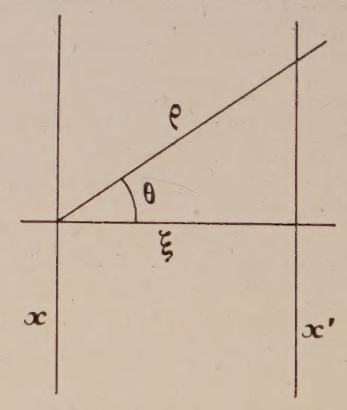


Fig. 1.

Les neutrons « rapides » sont séparés des neutrons « lents ». $\int_R$ indique que l'intégrale doit être étendue au spectre des neutrons rapides et le troisième terme représente les neutrons $\boldsymbol{v}_r$ nés par chocs élastiques et inélastiques de neutrons rapides. Le dernier terme enfin donne le nombre de neutrons rapides créés par chocs inélastiques de neutrons

(*) D. J. Hughes, Pile neutrons research, p. 249.

lents. S_1 est un terme de source que nous allons calculer ci-dessous.

Les neutrons lents de vitesse v_1 ont été créés eux-mêmes par chocs inélastiques de neutrons rapides. En un plan d'abscisse x' (*fig.* 1) il en existe un nombre :

$$Q_1(x') = \int_R D(x', v'_r)\, P(v'_r, v_1)\, \mathrm{d}v'_r. \tag{3-4}$$

Dans un angle solide il y a $Q_1(x') \dfrac{\sin\theta}{2} \mathrm{d}\theta$ neutrons de vitesse v_1. Ceux qui atteignent le plan x, issus de x' et le traversent sont au nombre de :

$$Q_1(x') \frac{\sin\theta}{2} \mathrm{d}\theta \frac{\alpha_1}{2} \mathrm{e}^{-\alpha_1\rho} \mathrm{d}\rho. \tag{3-5}$$

Au total, le nombre de neutrons issus du plan x' et traversant le plan x est

$$Q_1(x') \frac{\alpha_1}{2} \int_0^{\pi/2} \frac{\sin\theta}{\cos\theta} \mathrm{d}\theta\, \mathrm{d}\xi\, \mathrm{e}^{-\frac{\alpha\xi}{\cos\theta}} = -\frac{\alpha_1}{2} E_1(-\alpha_1|\xi|)\, Q_1(x')\, \mathrm{d}\xi$$

où

$$\xi = x' - x = \rho\cos\theta \text{ et } - E_1(-u) = \int_0^{\mu} (e^{-t}/t)\, \mathrm{d}t.$$

Le nombre de ces neutrons qui passent à la vitesse v_r est de :

$$-\frac{\alpha_1}{2} E_1(-\alpha_1|\xi|) \frac{X(v_1, v_r)\, \mathrm{d}\xi}{\Sigma_{a1} + \int_R X(v_1, v_r)\, \mathrm{d}v_r} = -\frac{X(v_1, v_r)}{2} E_1(-\alpha_1|\xi|)\, Q_1(x')\, \mathrm{d}\xi.$$

Le nombre total de neutrons « lents » passant dans le groupe rapide au plan x sera donc :

$$\int_L S_1\, \mathrm{d}v_1 = \frac{-1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}\xi \int_R \mathrm{d}v'_r \int_L X(v_1, v_r)\, E_1(-\alpha_1|\xi|)\, P(v'_r, v_1)\, D(x', v'_r)\, \mathrm{d}v_1. \tag{3-6}$$

L'équation du bilan (3-3) devient :

$$v_r \mu \frac{\partial}{\partial x} D(x, v_r) + v_r \Sigma D(x, v_r) - \int_R P(v'_r, v_r)\, D(x, v'_r)\, \mathrm{d}v'_r + \frac{1}{2} \int_L \mathrm{d}v_1 \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}\xi \int_R X(v_1, v_r)\, E_1(-\alpha_1|\xi|)\, P(v'_r, v_1)\, D(x', v'_r)\, \mathrm{d}v'_r = 0. \tag{3-7}$$

Nous allons supposer maintenant que tous les chocs sont isotropes, et nous allons développer D en série de polynômes de Legendre. Il est tout à fait légitime, dans le groupe « rapide », de se borner aux deux premiers termes, car $\Sigma(v) \gg \omega$.

Remarquons que $\mathrm{d}\mu$ représente l'élément d'angle solide autour de la direction v_r (en symétrie plane)

$$\int X(v_1, v_r)\, \mathrm{d}\mu = X(v_1, v_r).$$

Un traitement analogue à celui déjà fait donne :

$$\begin{cases} \dfrac{v_r}{3} \dfrac{\partial}{\partial x} D_1(x, v_r) + v_r \Sigma D_0(x, v_r) - \displaystyle\int_R P(v'_r, v_r)\, D_0(x, v'_r)\, \mathrm{d}v'_r + \frac{1}{2} \int_L \mathrm{d}v_1 \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}\xi \int X(v_1, v_r)\, E_1(-\alpha_1|\xi|)\, P(v'_r, v_1)\, D_0(x', v'_r)\, \mathrm{d}v'_r = 0 \\ \dfrac{1}{3} v_r \dfrac{\partial}{\partial x} D_0(x, v_r) + \dfrac{1}{3} v_r \Sigma D_1(x, v_r) = 0. \end{cases}$$

Soit :

$$-\frac{v_r}{3\Sigma} \frac{\partial^2}{\partial x^2} D_0(x, v_r) + v_r \Sigma D_0(x, v_r) - \int_R P(v'_r, v_r)\, D_0(x, v'_r)\, \mathrm{d}v'_r + \frac{1}{2} \int_L \mathrm{d}v_1 \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}\xi \int X(v_1, v_r)\, E_1(-\alpha_1|\xi|)\, P(v'_r, v_1)\, D_0(x', v'_r)\, \mathrm{d}v'_r = 0,$$

Nous cherchons pour $D_0(x, v)$ une solution de la forme

$$vD_0(x, v) = \Phi(v)\, \mathrm{e}^{-\omega x}.$$

En remarquant que l'on peut écrire

$$P(v', v) = vX(v', v),$$

que $\mathrm{e}^{-\omega x'} = \mathrm{e}^{-\omega\xi}\, \mathrm{e}^{-\omega x}$ et en séparant dans le deuxième terme de (3-10) les sections efficaces de capture élastique et inélastique, il vient :

$$-\frac{\omega^2}{3} \frac{1}{\Sigma(v_r)} \Phi(v_r) + \Sigma_a(v_r)\, \Phi(v_r) + \Phi(v_r) \int_R X(v_r, v'_r)\, \mathrm{d}v'_r + \Phi(v_r) \int_L X(v_r, v_1)\, \mathrm{d}v_1 - \int X(v'_r, v_r)\, \Phi(v'_r)\, \mathrm{d}v'_r + \frac{1}{2} \int_L \mathrm{d}v_1 \int_{-\infty}^{+\infty} X(v_1, v_r)\, E_1(-\alpha_1|\xi|)\, \mathrm{e}^{-\omega\xi}\, \mathrm{d}\xi \int_R X(v'_r, v_1)\, \Phi(v'_r)\, \mathrm{d}v'_r = 0. \tag{3-11}$$

Nous allons utiliser une méthode analogue à celle du paragraphe *a*) de la deuxième partie.

Intégrons sur l'ensemble du spectre des neutrons rapides. Il vient :

$$-\frac{\omega^2}{3} \int_R \frac{1}{\Sigma(v_r)} \Phi(v_r)\, \mathrm{d}v_r + \int_R \Sigma_a(v_r)\, \Phi(v_r)\, \mathrm{d}v_r + \int_R \Phi(v_r)\, \mathrm{d}v_r \int_L X(v_1, v_r)\, [1 - A_1(\omega)\, \Sigma_1^R]\, \mathrm{d}v_1 = 0 \tag{3-12}$$

où

$$A_1(\omega) = -\frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{e}^{-\omega\xi} E_1(-\alpha_1|\xi|)\, \mathrm{d}\xi$$

et où l'on a tenu compte de la relation (3-1).

Calculons

$$\int_R \Phi(v_r)\, dv_r \int_L X(v_r, v_l)\, [1 - A_1(\omega)\, \Sigma_l^R]\, dv_l. \quad (3\text{-}13)$$

Le principe de micro-réversibilité s'écrit :

$$X(v_r, v_l)\, v_r\, M(v_r) = X(v_l, v_r)\, v_l\, M(v_l)$$

où $M(v)$ est la répartition de Maxwell à la vitesse v (3-13) devient

$$\int_L dv_l \int_R \Phi(v_r)\, X(v_l, v_r)\, \frac{v_l\, M(v_l)}{v_r\, M(v_r)}\, [1 - A_1(\omega)\, \Sigma_l^R]\, dv_r. \quad (3\text{-}14)$$

On peut supposer que le flux de neutrons rapides reste peu différent d'une distribution de Maxwell :

$$\Phi(v_r) \# v_r M(v_r).$$

(3.14) devient :

$$\int_L v_l\, M(v_l)\, [\Sigma_l^R - A_1(\omega)\, (\Sigma_l^R)^2]\, dv_l. \quad (3\text{-}15)$$

Un rapide calcul montre que

$$A_1(\omega) = \frac{1}{2\,\omega} \operatorname{Log} \frac{\alpha_1 + \omega}{\alpha_1 - \omega}.$$

Remarquons que l'intégrale donnant $A_1(\omega)$ n'a de sens que si $\alpha_1 > \omega$.

Or, $\alpha_1 = \Sigma_l^{\text{total}}$. Cette condition est équivalente à la condition déjà trouvée au paragraphe *b*) de la deuxième partie.

On pourra donc écrire l'équation finale ; en tenant compte de

$$vM(v) = v^3\, e^{-v^2/v_0^2}$$

$$-\frac{\omega^2}{3} \int_{v_c}^{\infty} \frac{\Phi(v_r)}{\Sigma(v_r)}\, dv_r + \int_{v_c}^{\infty} \Sigma_a(v_r)\, \Phi(v_r)\, dv_r$$

$$+ \int_0^{v_c} v^3\, e^{-v^2/v_0^2} \left[\Sigma_l^R - \frac{(\Sigma_l^R)^2}{2\,\omega} \operatorname{Log} \frac{\Sigma_l^{\text{total}} + \omega}{\Sigma_l^{\text{total}} - \omega} \right] dv_l = 0. \quad (3\text{-}16)$$

Remarquons que le flux de neutrons lents n'est pas nécessairement maxwellien.

En effet, pour les neutrons de vitesse v_l on a :

$$\Phi(v_l) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_1(-\alpha_1 |\xi|)\, d\xi$$

$$\int_{v_c}^{+\infty} \Phi(v_r')\, e^{-\omega x'}\, X(v_r', v_l)\, dv_r'$$

$$= e^{-\omega x} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\omega \xi}\, E_1(-\alpha_1 |\xi|) \int_{v_c}^{\infty} \Phi(v_r')\, X(v_r', v_l)\, dv_r'$$

$$= e^{-\omega x}\, A_1(\omega)\, \Sigma_l^R\, v_l\, M(v_l). \quad (3\text{-}17)$$

D'où l'écart à la loi de Maxwell :

$$\frac{\Phi(v_l)}{v_l\, M(v_l)} = \frac{\Sigma_l^R}{2\,\omega} \operatorname{Log} \frac{\Sigma_l^R + \Sigma_{al} + \omega}{\Sigma_l^R + \Sigma_{al} - \omega}. \quad (3\text{-}18)$$

Si la capture devient nulle, le deuxième membre tend vers 1, et

$$\Phi(v_l) = v_l\, M(v_l).$$

B. Cas d'une loi de chocs non isotropes. — Dans ce qui précède, nous n'avons pas envisagé le cas d'une loi de choc non isotrope. Ceci a peu d'importance dans le cas des chocs inélastiques que nous supposerons toujours isotropes, mais nous avons négligé le cas des chocs élastiques qui dans le cas d'une poudre cristalline obéissent à la loi de Bragg.

Remarquons que cela ne signifie pas que la distribution soit anisotrope. En effet, une première direction donne lieu en un point à des diffusions obéissant à la loi de Bragg, donc à des angles bien déterminés. Les directions diffusées donnent, à leur tour, lieu à des diffusions dont les directions ne coïncident pas nécessairement avec une des directions incidentes. De plus les chocs inélastiques sont isotropes et la distribution des neutrons peut donc être considérée comme presque isotrope. Le développement en polynômes de Legendre reste justifié si la condition $\omega < \Sigma(v)$ est remplie. Dans ce qui suit nous allons séparer les sections efficaces élastiques et inélastiques, et ne pas tenir compte de la source de neutrons lents qui ne subissent que des chocs inélastiques, donc isotropes.

La loi des chocs élastiques doit obéir à la relation de Bragg et on pourra écrire :

$$\underset{|\boldsymbol{v}| = |\boldsymbol{v}'|}{P(\boldsymbol{v}, \boldsymbol{v}')} = \frac{2 \int P_M(v)\, \delta(\cos\theta - \cos\theta_M)\, \sin\theta\, d\theta\, d\varphi}{\int \sin\theta\, d\theta\, d\varphi}. \quad (3\text{-}19)$$

Le facteur 2 est un facteur de normalisation nécessaire à l'obtention d'une bonne valeur de la section efficace. θ est l'angle entre $\boldsymbol{v}$ et $\boldsymbol{v}'$, θ_M l'angle de déviation de Bragg correspondant à la réflexion M.

L'équation de Boltzmann s'écrit

$$v\,\mu \frac{\partial}{\partial x} D(x, \boldsymbol{v}) + v\, \Sigma_{ne}\, D(x, \boldsymbol{v})$$

$$+ \underset{M}{S}\, D(x, v)\, \frac{2 \int P_M(v)\, \delta(\cos\theta - \cos\theta_M)\, \sin\theta\, d\theta\, d\varphi}{4\pi}$$

$$- \int \mathcal{F}(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v})\, D(x, \boldsymbol{v}')\, d\boldsymbol{v}'$$

$$- \underset{M}{S} \frac{\int D(x, \boldsymbol{v}')\, 2 P_M(v)\, \delta(\cos\theta' - \cos\theta_M)\, \sin\theta'\, d\theta'\, d\varphi}{4\pi} = 0. \quad (3\text{-}20)$$

Dans cette équation Σ_{ne} désigne les termes non élastiques de la section efficace

$$\mathcal{F}(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v}) = \begin{cases} P(\boldsymbol{v}', \boldsymbol{v}) & \text{si} \quad |\boldsymbol{v}| \neq |\boldsymbol{v}'| \\ 0 & \text{si} \quad |\boldsymbol{v}| = |\boldsymbol{v}'| \end{cases}$$

Nous allons développer D en série de polynômes de Legendre

$$D = D_0 + \mu D_1.$$

Il vient

$$v\,\mu \frac{\partial}{\partial x}\,[D_0(x, v) + \mu D_1(x, v)]$$
$$+ v\,\Sigma_{ne}\,[D_0(x, v) + \mu D_1(x, v)]$$
$$+ \underset{M}{S}\,[D_0(x, v) + \mu D_1(x, v)$$
$$\frac{\int 2 P_M(v)\,\delta\,(\cos\theta - \cos\theta_M)\,\sin\theta\,\mathrm{d}\theta\,\mathrm{d}\varphi}{4\pi}$$
$$-\int \mathcal{P}(v', v)\,D_0(x, v')\,\mathrm{d}v' - \underset{M}{S}\,[D_0(x, v') + \mu D_1(x, v')]$$
$$\frac{\int 2 P_M(v)\,\delta\,(\cos\theta - \cos\theta_M)\,\sin\theta\,\mathrm{d}\theta\,\mathrm{d}\varphi}{4\pi} = 0. \quad (3\text{-}21)$$

Dans cette dernière somme

$v = v'$ d'où $D_0(x, v') = D_0(x, v)$; $D_1(x, v') = D_1(x, v)$.

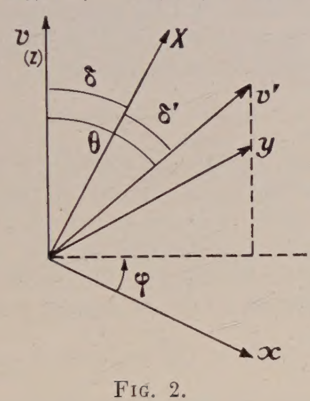


Fig. 2.

On voit sur la figure 2 où l'on a pris $\boldsymbol{v}$ comme axe des z que :

$$\mu' = \cos\delta' = \cos\theta\,\cos\delta + \sin\delta\,\sin\theta\,\cos\varphi$$

portant dans (3-21) on a :

$$v\,\mu \frac{\partial}{\partial x}\,[D_0(x, v) + \mu D_1(x, v)]$$
$$+ v\,\Sigma_{ne}\,(v)\,[D_0(x, v) + \mu D_1(x, v)]$$
$$+ v D_0(x, v)\,\Sigma_{el}\,(v) - \int P(v', v)\,D_0(x, v')\,\mathrm{d}v'$$
$$+ \mu D_1(x, v)\,\underset{M}{S}\,P_M(v)\,[1 - \cos\theta_M] = 0. \quad (3\text{-}22)$$

En intégrant en μ cette équation telle quelle, et multipliée par μ, il vient

$$D(x, v) = -\frac{\partial}{\partial x}\,D_0(x, v)\,\left\{\,\Sigma^{\text{total}}_{(v)} - \underset{M}{S}\,\Sigma\,(M)\,\cos\theta_M\,\right\}^{-1}$$
$$= -\frac{\partial}{\partial x}\frac{D_0(x, v)}{\Sigma_{\text{transport}}}. \quad (3\text{-}22)$$

On voit que tous les raisonnements faits ci-dessus restent valables en remplaçant $\dfrac{v}{3\Sigma}\dfrac{\partial^2}{\partial x^2}$ par $\dfrac{v}{3\Sigma_{\text{tr}}}\dfrac{\partial^2}{\partial x^2}$ tel que :

$$\Sigma_{\text{tr}}\,(v) = \Sigma^{\text{total}}_{(v)} - \underset{M}{S}\,\Sigma_{\text{el}}\,(M, v)\,\cos\theta_M. \quad (3\text{-}23)$$

En particulier l'équation (2-12) devient :

$$-\frac{v}{3\,\Sigma_{\text{tr}}}\frac{\partial^2}{\partial x^2}D_0(x, v) + v\,\Sigma_{\text{a}}\,(v)\,D_0(x, v) + D_0(x, v)$$
$$\int P(v, v')\,\mathrm{d}v' - \int P(v', v)\,D_0(x, v')\,\mathrm{d}v' = 0 \quad (3\text{-}24)$$

et l'équation (3-16)

$$-\frac{\omega^2}{3}\int_{v_{\text{c}}}^{\infty}\frac{\Phi(v_{\text{r}})}{\Sigma_{\text{tr}}\,(v_{\text{r}})}\,\mathrm{d}v_{\text{r}} + \int_{v_{\text{c}}}^{\infty}\Sigma_{\text{a}}\,(v_{\text{r}})\,\Phi(v_{\text{r}})\,\mathrm{d}v_{\text{r}}$$
$$+ \int_0^{v_{\text{c}}} v_{\text{l}}^3\,\mathrm{e}^{-v_l^2/v_0^2}\left[\Sigma_{\text{l}}^R - \frac{(\Sigma_{\text{l}}^R)^2}{2\,\omega}\,\text{Log}\,\frac{\Sigma_{\text{l}}^R + \Sigma_{\text{a}} + \omega}{\Sigma_{\text{l}}^R + \Sigma_{\text{a}} - \omega}\right]$$
$$\mathrm{d}v_{\text{l}} = 0. \quad (3\text{-}25)$$

IV. **Application au cas du béryllium et de la glucine.** — Nous avons vu que dans le cas d'une poudre cristalline, l'équation donnant la longueur de diffusion prend la forme (3-25).

Il est possible à l'aide de cette équation de calculer par exemple Σ_{a}, supposée en $1/v$, si on connaît ω, $\Sigma_{\text{tr}}(v)$, et Σ_{l}^R.

a) Calcul de la section efficace de transport. — Dans le cas d'une poudre cristalline la section efficace élastique est donnée par :

$$\sigma_{\text{el}} = \sum_{M \leqslant 2k}\frac{FN}{k^2}\frac{\mathrm{e}^{-\Omega M^2}}{8\pi\,M}\,(\textit{fig. } 3) \quad (4\text{-}1)$$

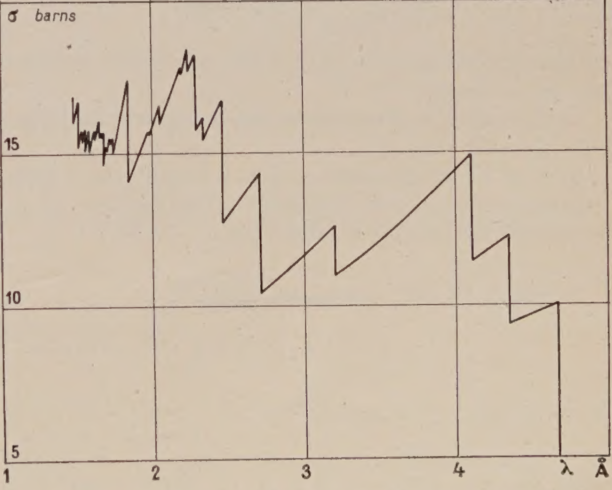


Fig. 3. — Section efficace calculée de la glucine.

$e^{-\Omega M^2}$ représente le facteur de Debye-Waller :

$$\Omega = \frac{3h^2}{mk_0\,\Theta}\left[\frac{1}{4} + \left(\frac{T}{\Theta}\right)^2 \int_0^{\Theta/T} \frac{x}{e^x - 1}\,dx\right].$$

Θ est la température de Debye du corps considéré, T la température d'expérience, k_0 la constante de Boltzmann, m la masse de l'atome.

F est le facteur de forme par maille élémentaire, M une translation du réseau réciproque, k le nombre d'onde du neutron incident, $k = 1/\lambda$. N est le nombre de mailles par unité de volume. σ_{el} est donc la section efficace par maille.

L'angle de Bragg θ_M est tel que :

$$\sin(\theta_M/2) = M/2k.$$

Soit

$$\cos\theta_M = 1 - (M^2/2k^2)$$

La section efficace de transport prend donc la forme :

$$\sigma_{tr}(v) = \sum_{M \leqslant 2k} \frac{FN}{2k^4}\frac{M}{8\pi}\,e^{-\Omega M^2}.$$

α) *Cas du beryllium.* — Le beryllium a une structure hexagonale compacte ; il s'ensuit que :

$$M^2 = A^2(p^2 + q^2 + pq) + C^2 r^2 \quad p, q, r \text{ entiers}$$

$$A = 2/a\sqrt{3} \qquad C = 1/c$$

où a et c sont les paramètres de la maille.

$$F = 2\sigma_{Be}\left[1 + \cos\pi\left(\frac{2p + 4q + 3r}{3}\right)\right]$$

où σ_{Be} est la section efficace du beryllium soit 7,54 barns. La température de Debye est de 1 000 °K. On calculera

$$\left\langle \frac{1}{\sigma_{tr}} \right\rangle = \int_{k_c}^{\infty} \frac{k^2\,e^{-k^2/k^2_M}\,dk}{\sum\limits_{M \leqslant 2k} \frac{FN}{2k^4}\frac{M}{8\pi}\exp(-\Omega M^2)}. \quad (4\text{-}2)$$

Après estimation du reste de la série (au 80° terme) par une intégrale on détermine :

$$\frac{1}{\langle 1/\sigma_{tr}\rangle} = 5{,}63 \text{ barns}$$

en bon accord avec la valeur de 5,65 barns calculée par R. G. Sachs (*).

Cette valeur correspond à une longueur de transport de 1,41 cm.

β) *Cas de la glucine.* — La formule (4-1) reste valable. Nous avons pris pour simplifier les calculs le facteur de Debye-Waller égal à l'unité.

$$F = \left[\sigma_{Be} + \sigma_0 + 2\sqrt{\sigma_{Be}\,\sigma_0}\cos\frac{3\pi r}{4}\right]\left[1 + \cos\pi\frac{2p + 4q + 3r}{3}\right]$$

$$M^2 = A'^2(p^2 + q^2 + pq) + C'^2 r^2 \quad A' = 2/a'\sqrt{3} \quad C' = 1/c'$$

avec a' et c' paramètre de la maille de BeO. Le calcul est analogue à celui fait pour le beryllium et $\frac{1}{\langle 1/\sigma_{tr}\rangle} = 11{,}55$ barns. La valeur réelle, compte tenu du facteur de Debye doit être sensiblement inférieure. La longueur de transport correspondante est de 1,18 cm.

b) Calcul de la section efficace de capture du beryllium. — α) La section efficace inélastique du beryllium au-dessous de la coupure est donnée par Palevsky et R. R. Smith et est reproduite dans le livre de D. J. Hughes (p. 252).

On peut admettre que cette section efficace est constante et égale à 0,46 barns pour des longueurs d'onde comprises entre 6 Å et la longueur d'onde de coupure. La section efficace inélastique varie ensuite en « $1/v$ » pour des longueurs d'onde allant de 6 Å à l'infini et vaut $\Sigma_I^R = 0{,}0766\ \lambda$, Σ_I^R en barns, λ en Å.

La dernière intégrale de l'équation (2-25) se calcule aisément si l'on suppose que e^{-v^2/v_0^2} est peu différent de l'unité. Si l'on prend pour la longueur de diffusion une valeur de 21,8 cm, la résolution de (2-25) conduit à une valeur de

$$\sigma^a_{(v_0)} = 14{,}5 \text{ mbarns}$$

pour la section efficace de capture à 2 200 cm/sec.

β) Dans le cas de la glucine, L vaut 31,8 cm ce qui conduit pour ω à une valeur de 0,43 barn. La section efficace inélastique a été mesurée par B. Jacrot et G. Sarma (*). On peut la considérer comme variant en « $1/v$ » et donnée par l'équation :

$$\Sigma_I^R = 0{,}1\ \lambda \quad (\Sigma_I^R \text{ en barns, } \lambda \text{ en Å})$$

La résolution de l'équation (2-25) conduit à :

$$\sigma^a_{(v_0)} = 10{,}5 \text{ mbarns à } 2\,200 \text{ m/s}.$$

La différence entre les deux valeurs reste importante. Elle provient vraisemblablement de deux causes complémentaires.

1) Dans le calcul de λ_{tr}, il n'a pas été tenu compte du facteur de Debye, difficile à exprimer dans le cas de mailles formées d'atomes différents, ce qui conduit à une valeur trop faible de λ_{tr} et par conséquent de Σ^a.

2) Les corps utilisés pour les mesures ne doivent pas avoir la même pureté ; à la plus grande pureté correspond la plus faible section efficace de capture.

c) Déformation du spectre de Maxwell. — L'écart à la loi de Maxwell est donné par la formule (3-18). Cette formule donne la valeur limite du rapport du spectre déformé au spectre de Maxwell. Cette limite existe comme conséquence du

(*) Cette valeur de 5,65 barns est citée par D. J. Hughes (Piles Neutrons Research, p. 223). Le calcul de Sachs n'a pas été publié. Voir référence [4].

(*) Communication privée.

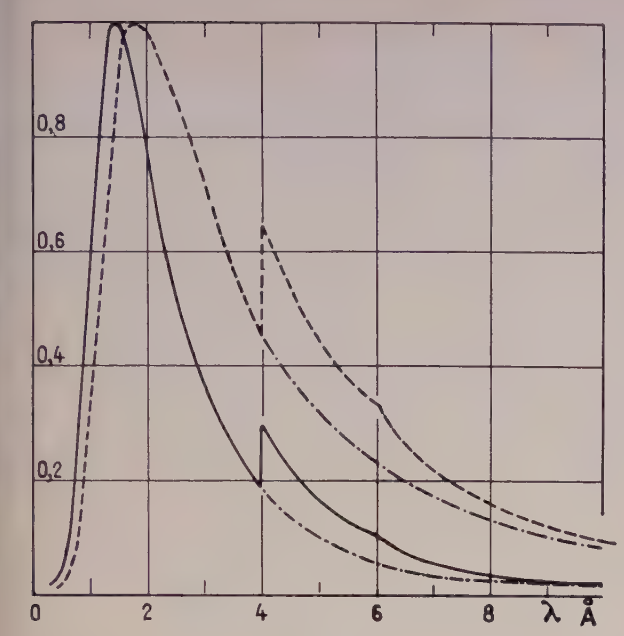


Fig. 4. — Déformation du spectre de Maxwell dans le béryllium.
——— flux des neutrons,
— — densité des neutrons,
— . — spectre de Maxwell.

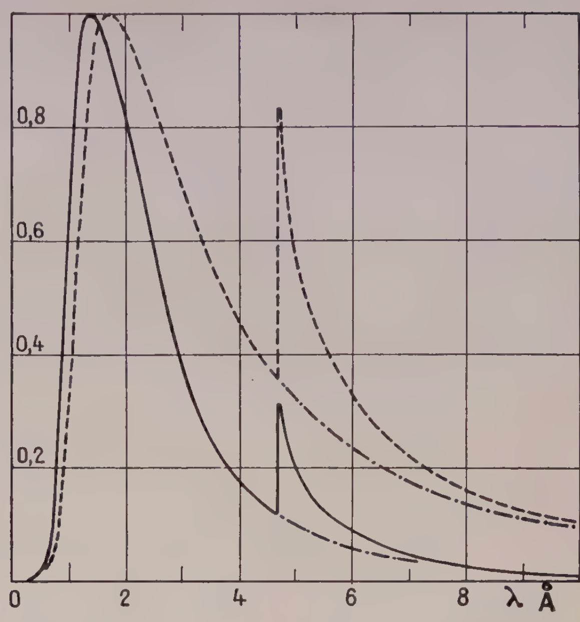


Fig. 5. — Déformation du spectre de Maxwell dans la glucine.
——— flux des neutrons,
— — densité des neutrons,
— . — spectre de Maxwell.

sait qu'il a été possible de définir une longueur de diffusion. La partie déformée reste solidaire du reste du spectre. D. J. Hughes nous avait signalé oralement que cette déformation avait été observée expérimentalement dans le cas du beryllium. Nous avons fait le calcul de la formule (3-18) pour un certain nombre de longueurs d'onde supérieures à celles de la coupure. Les résultats pour le béryllium et la glucine sont reportés sur les courbes ci-jointes (*fig.* 4 et 5) et dans le tableau ci-dessous.

α) Cas du béryllium

λ en Å	3,95	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
Φ_l/Φ_M	1,42	1,42	1,42	1,25	1,17	1,12	1,10	1,08	1,06	1,05	1,04	1,04

β) Cas de la glucine

λ en Å	4,68	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
Φ_l/Φ_M	2,42	1,73	1,32	1,20	1,14	1,10	1,08	1,07	1,053	1,045	1,04	1,03

Manuscrit reçu le 22 octobre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Hughes (D. J.), Pile Neutron Research, p. 223.
[2] Conf. utilis. pac. en. atom., Genève P/872 Inde, P/360 France.
[3] Fermi, Sturm et Sachs, *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 589.
[4] Sachs (R. G.), Rapport déclassé : A. E. C. D. 2269.
[5] Horowitz (J.) et Messiah (A.), Rapport SPM n° 5.

VALIDITÉ DE LA REPRÉSENTATION PAR MODÈLE ÉLECTRIQUE DES EFFETS DE RÉSONANCE MAGNÉTIQUE NUCLÉAIRE

Par Georges BONNET,
Centre d'Études Nucléaires de Grenoble.

Résumé. — L'étude du comportement d'un transducteur à résonance magnétique formé de l'association d'un réseau électrique et d'un ensemble de noyaux dotés de spin, montre qu'il est possible d'en déduire une représentation analytiquement équivalente au moyen d'un modèle entièrement électrique utilisable pour un régime transitoire aussi bien que pour un régime permanent. Une étude détaillée des conditions de validité permet d'en justifier l'emploi dans la majorité des cas.

On propose enfin un critère de linéarité des équations de Bloch en régime transitoire, qui constitue un prolongement de la condition connue de non-saturation en régime stationnaire.

Abstract. — When studying the behaviour of a magnetic resonance transductor formed by the association of an electrical network and of a set of nuclear spins, it is possible to bring about a representation that is analytically equivalent by means of an entirely electrical model, available for transients as well as steady-state. A detailed study of the validity conditions justifies its use in most cases.

Also proposed is a linearity criterion of Bloch's equations in transient-state that is simply the prolongation of the well-known condition of non-saturation in the steady-state.

I. INTRODUCTION.

L'emploi d'un réseau électrique analytiquement équivalent à un système physique complexe a trouvé sa source dans le domaine de l'électromécanique et les travaux de P. Le Corbeiller, Y. Rocard, W. P. Mason — parmi tant d'autres — lui ont assuré un grand développement.

Il semble que l'intérêt principal de cette méthode réside dans l'unicité axiomatique qu'elle confère aux problèmes d'adaptation réciproque entre systèmes d'essence différente. En outre, la théorie des réseaux électriques a fait l'objet d'une somme de recherches considérable et l'application de ses résultats à d'autres domaines qui lui sont intégrés par cette voie est toujours bénéfique.

N. Bloembergen et R. V. Pound [1] avaient fait allusion à la similitude entre un montage à résonance gyromagnétique et un réseau électrique à double accord, et tout récemment P. D. Carter a proposé un schéma équivalent à un filtre à cristal de grenat [2], ces auteurs n'envisageant d'ailleurs que l'équivalence en régime stationnaire idéal. G. Brunner et A. Loesche [3] ont proposé un modèle qui rend compte du comportement d'un système de spins isolé et l'ont étendu du régime stationnaire à celui de « passage rapide ». Ils n'ont pas envisagé la recherche d'un modèle plus complet qui puisse traduire l'interaction entre spins et circuit électrique de mesure.

Nous nous proposons ici de rechercher le modèle électrique généralisé des transducteurs de champ magnétique qui utilisent la résonance nucléaire, en mettant l'accent sur ses conditions de validité dans un régime quelconque.

L'observable utilisée dans de tels transducteurs est la fréquence des transitions entre sous-niveaux Zeeman d'un ensemble de moments nucléaires

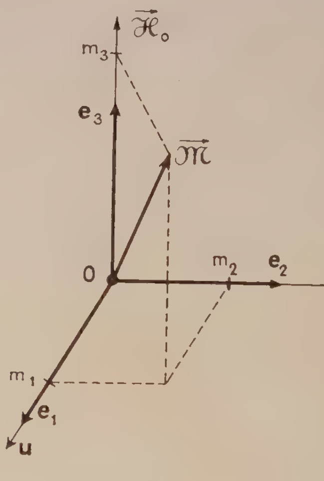


Fig. 1.

placés en présence du champ magnétique semi-permanent à étudier et soumis à un rayonnement transversal de radiofréquence, la relation champ/fréquence étant celle de Larmor. On peut schématiser le montage de base sous la forme d'un échantillon gyromagnétique contenu dans le volume intérieur d'un circuit électrique générateur du rayonnement transversal, lui-même fermé sur une certaine charge électrique. L'axe $\boldsymbol{u}$ du générateur du champ magné-

tique de radiofréquence — bobine ou cavité suivant le cas — et la direction du champ permanent $\vec{\mathcal{H}}_0$, supposés orthogonaux pour simplifier, définissent une base fixe $(\boldsymbol{e}_1\, \boldsymbol{e}_2\, \boldsymbol{e}_3)$ que l'on norme, et l'on a, par exemple : $\boldsymbol{u} = |u|\boldsymbol{e}_1, \vec{\mathcal{H}}_0 = H_0\, \boldsymbol{e}_3$ (*fig.* 1). L'ensemble des spins nucléaires d'une part, et le réseau électrique linéaire d'autre part, constituent un système couplé dont nous étudierons successivement l'évolution libre et forcée.

II. ÉVOLUTION LIBRE DU SYSTÈME COUPLÉ.

A. **Ensemble gyromagnétique isolé.** — Si l'on considère le système de spins isolé et soumis uniquement à l'influence du champ permanent, on sait que, sous certaines conditions, son évolution, envisagée sous l'aspect macroscopique, est régie avec une très bonne approximation par le schème de Bloch [4]. Dans la base définie précédemment, l'aimantation $\boldsymbol{M}(t)$ est reliée à l'aimantation à l'équilibre $m_0\, \boldsymbol{e}_3$ par :

$$\frac{\mathrm{d}\boldsymbol{M}}{\mathrm{d}t} = (\gamma \boldsymbol{M} \wedge \boldsymbol{H}_0) - \frac{1}{T_2}(\boldsymbol{M}.\boldsymbol{e}_1)\,\boldsymbol{e}_1 - \frac{1}{T_2}(\boldsymbol{M}.\boldsymbol{e}_2)\,\boldsymbol{e}_2 - \frac{1}{T_1}[(\boldsymbol{M}.\boldsymbol{e}_3) - m_0]\,\boldsymbol{e}_3 \quad (1)$$

où γ est le rapport gyromagnétique, caractéristique des spins nucléaires utilisés, T_1 le temps de relaxation spin-milieu et T_2 le temps de relaxation spin-spin. Si l'on s'intéresse à la paire constituée par l'aimantation projetée sur l'axe de la bobine, $m_1 = (\boldsymbol{M}.\boldsymbol{e}_1)$, et l'aimantation projetée sur le champ permanent, $m_3 = (\boldsymbol{M}.\boldsymbol{e}_3)$, il est facile de tirer de (1) le groupe d'équations :

$$\left\{\frac{\mathrm{d}^2}{\mathrm{d}t^2} + \frac{2}{T_2}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \left(\omega_0^2 + \frac{1}{T_2^2}\right)\right\} m_1 = 0 \quad (2a)$$

$$\left\{\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \frac{1}{T_1}\right\} m_3 = \frac{1}{T_1}\, m_0. \quad (2b)$$

Nous avons supposé implicitement que la condition $\left|\frac{1}{H_0}\frac{\mathrm{d}H_0}{\mathrm{d}t}\right| \ll \frac{1}{T_2}$ se trouve toujours largement remplie, comme on le verra plus loin. L'équation (2*a*) montre que le système est pendulaire et que la solution libre est une oscillation de fréquence cyclique $\omega_0 = \gamma H_0$, fréquence de Larmor, amortie suivant le décrément $\delta = 2\pi/\omega_0 T_2$. On peut parler d'une « surtension des spins » égale à

$$Q_s = \pi/\delta = (1/2)\,\omega_0\, T_2$$

valeur qui, en pratique atteint et dépasse souvent 10^4 (*). La composante m_3 évolue apériodiquement avec la constante de temps T_1 (m_2 suivrait une loi identique à celle de m_1). Il est remarquable que le système isolé soit un système linéaire comme le montre (2) et nous allons voir que c'est le couplage qui introduit une non-linéarité.

(*) C'est en tenant compte de l'aspect pendulaire du système gyromagnétique isolé que Brunner et Loesche [*loc. cit*] ont utilisé expérimentalement un circuit résonant électrique qui leur a permis une très belle simulation des phénomènes de « wiggles » en passage rapide.

B. **Réseau électrique linéaire.** — Nous allons supposer d'abord que la charge de la bobine — dont L est l'auto-inductance et R la résistance de pertes — est passive et constituée par une simple capacité C. Ce réseau constitue un deuxième système pendulaire dont l'évolution libre est régie par une équation homogène du type :

$$\left\{\frac{\mathrm{d}^2}{\mathrm{d}t^2} + \frac{\omega_R}{Q}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \omega_R^2\right\} = 0 \quad (3)$$

ω_R est la population propre : $\omega_R = (LC)^{-1/2}$.
Q est la surtension : $Q = L\omega_R/R$.

L'interaction avec le système de spins introduira un terme de couplage au second membre de (3). Si l'on tient compte de ce que la surtension du réseau, de l'ordre de la centaine ou même moins, est très faible devant la « surtension des spins » il est à prévoir que cette interaction imposera à (3) un régime forcé dont le spectre de fréquences sera centré au voisinage de la fréquence de Larmor, ce qui amène à accorder le réseau près de cette fréquence : $\omega_R \sim \omega_0$.

A cause de l'effet de filtrage, ce spectre est nécessairement étroit, sa largeur étant de l'ordre de la bande passante du réseau tout au plus. Il en résulte que le régime sous interaction peut se mettre sous la forme

$$A_1(t)\cos\omega t + A_2(t)\sin\omega t \quad \text{avec } \omega \sim \omega_0. \quad (4)$$

Les amplitudes $A_1(t)$ et $A_2(t)$ varient lentement dans le temps et, en particulier, leur variation pendant une période est très faible, d'où

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}A_i \ll \omega_0\, A_i. \quad (5)$$

C. **Système couplé.** — L'interaction entre l'ensemble de spins et le réseau électrique se présente sous un double aspect : le courant circulant dans la bobine crée un champ qui s'ajoute vectoriellement au champ permanent et perturbe le régime libre, les variations de la projection de l'aimantation sur l'axe de la bobine se traduisent d'autre part par une variation de son flux d'induction et y induisent une force électromotrice.

1. Relations courant-aimantation. — Considérons d'abord la première composante du courant conforme à la forme (4) :

$$i(t) = I(t)\cos\omega t. \quad (6)$$

Sachant que le champ magnétique $\vec{\mathcal{H}}(\boldsymbol{r}, t)$ qu'il produit lui est proportionnel en tout point $\boldsymbol{r}$ de

l'espace, $\vec{\mathcal{H}}(\boldsymbol{r}, t) = \boldsymbol{k}(r).i(t)$, nous pouvons suivant I. Solomon [5], [6], définir un champ magnétique moyen $\boldsymbol{H}$ dans le volume τ de l'échantillon :

$$\boldsymbol{H} = \left[\frac{1}{\tau}\int_\tau \boldsymbol{k}(\boldsymbol{r})\,\mathrm{d}\tau\right].i(t) \equiv \boldsymbol{K}i(t)$$

lequel, si l'on tient compte de la symétrie de la bobine, est dirigé suivant son axe :

$$\boldsymbol{H} = H\boldsymbol{e}_1 = KI(t)\cos\omega t.\boldsymbol{e}_1. \tag{7}$$

Il est bien connu que ce champ oscillant peut se décomposer en deux vibrations circulaires tournant dans deux sens opposés dans le plan [001] et que, selon F. Bloch et A. Siegert [7], l'une de ces composantes n'a d'autre effet que de déplacer la fréquence de résonance des spins de la quantité

$$(H/H_0)^2\,(\omega_0/2\pi)$$

correction qui, dans les conditions expérimentales habituelles où $H/H_0 < 10^{-3}$, est entièrement négligeable. L'autre composante circulaire s'écrit dans la base fixe et si, par exemple, γ est positif :

$$\boldsymbol{H}^* = \frac{1}{2}KI(t)\cos\omega t.\boldsymbol{e}_1 - \frac{1}{2}KI(t)\sin\omega t.\boldsymbol{e}_2 \tag{8}$$

et nous savons, d'après (5), que son module ne variera pas de façon appréciable pendant quelques cycles de rotation. Le système d'équations de Bloch s'écrit alors

$$\left\{\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \frac{1}{T_2}\right\} m_1 = \omega_0 m_2 + \frac{1}{2}\gamma KI(t)\sin\omega t.m_3 \tag{9a}$$

$$\left\{\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \frac{1}{T_2}\right\} m_2 = -\omega_0 m_1 + \frac{1}{2}\gamma KI(t)\cos\omega t.m_3 \tag{9b}$$

$$\left\{\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \frac{1}{T_1}\right\} m_3 = \frac{1}{T_1}m_0 - \frac{1}{2}\gamma KI(t)\sin\omega t.m_1 - \frac{1}{2}\gamma KI(t)\cos\omega t.m_2. \tag{9c}$$

Par comparaison avec les équations (2) de l'ensemble isolé, on voit que ce sont les termes de couplage qui détruisent la linéarité ; m_3 dépend de $I(t)$ par (9c) ce qui introduit des termes non-linéaires dans les seconds membres de (9a) et (9b). Cependant, si nous nous limitons à un champ H suffisamment faible pour que sa composante circulaire puisse être traitée comme une perturbation, il apparaît [8], qu'à une approximation du second ordre près en H^2, m_3 suivra sa loi d'évolution libre définie par (2b). Les équations (9) se trouvent ainsi linéarisées et nous obtenons après élimination de m_2 :

$$\left\{\frac{\mathrm{d}^2}{\mathrm{d}t^2} + \frac{2}{T_2}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \left(\omega_0^2 + \frac{1}{T_2^2}\right)\right\} m_1 = \frac{1}{2}\gamma K\left(I(t)m_3\left[(\omega+\omega_0)\cos\omega t + \frac{1}{T_2}\sin\omega t\right] + \sin\omega t\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}[I(t)m_3]\right).$$

Quelques remarques amèneront à simplifier le terme perturbateur du second membre :

a) nous avons vu que ω demeure voisin de ω_0 et nous pouvons remplacer $(\omega + \omega_0)$ par 2ω ;

b) ω_0 étant très grand devant $1/T_2$, on peut négliger le terme en $(1/T_2)\sin\omega t$;

c) d'après la loi d'évolution (2b) que nous admettons dans l'approximation linéaire, $\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}m_3$ est de l'ordre de $(m_3 - m_0)/T_1$ et par suite :

$$\frac{\mathrm{d}t}{\mathrm{d}}m_3 \ll \omega_3 m_3.$$

L'évolution des moments nucléaires est alors régie par la loi :

$$\left\{\frac{\mathrm{d}^2}{\mathrm{d}t^2} + \frac{2}{T_2}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \left(\omega_0^2 + \frac{1}{T_2^2}\right)\right\} m_1 = \gamma Km_3\left[\omega I(t)\cos\omega t + \frac{1}{2}\frac{\mathrm{d}I}{\mathrm{d}t}\sin\omega t\right] \tag{10a}$$

$$\left\{\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \frac{1}{T_1}\right\} m_3 = \frac{1}{T_1}m_0. \tag{10b}$$

2. Relations aimantation-tension. — Les m_i représentent évidemment une valeur moyenne dans l'échantillon des composantes de l'aimantation. Suivant les équations de Bloch linéarisées, la valeur locale de la projection de l'aimantation sur le champ est proportionnelle en tous points à ce dernier. Si λ est ce facteur de proportionnalité à l'instant t, nous pouvons en tenant compte des propriétés géométriques de symétrie et de l'équation (7), mettre m_1 sous la forme

$$m_1 = \frac{1}{\tau}\lambda i(t)\int_\tau \boldsymbol{k}(\boldsymbol{r})\,\mathrm{d}\tau = \boldsymbol{K}\lambda\,i(t).$$

On en déduit la valeur de l'énergie emmagasinée par les spins

$$W = -\lambda i^2(t)\int_\tau k^2\,\mathrm{d}\tau = -(1/K)\,m_1\,i(t)\int_\tau k^2\,\mathrm{d}\tau$$

et la force électromotrice induite dans la bobine

$$-\frac{1}{K}\int_\tau k^2\,\mathrm{d}\tau.\mathrm{d}m_1/\mathrm{d}t.$$

On a coutume [6] d'utiliser le concept de « coefficient de remplissage » défini par

$$\eta = \int_\tau k^2\,\mathrm{d}\tau \Big/ \int_\infty k^2\,\mathrm{d}\tau. \tag{11}$$

Nous adopterons un système d'unités non rationalisées. L'intégrale située au dénominateur, étendue dans tout l'espace, est alors égale à $4\pi L/\mu_0$, L étant l'auto-inductance de la bobine et μ_0 la perméabilité du vide. Le coefficient de remplissage représente ainsi la fraction d'énergie magnétique que renferme le volume de l'échantillon en l'absence de matière aimantée. Finalement l'équa-

tion différentielle du réseau électrique prend la forme

$$\left\{\frac{\mathrm{d}^2}{\mathrm{d}t^2} + \frac{\omega_{\mathrm{R}}}{Q}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \omega_{\mathrm{R}}^2\right\} i = -\frac{4\pi\eta}{\mu_0 K}\frac{\mathrm{d}^2 m_1}{\mathrm{d}t^2}. \qquad (12)$$

D. **Le modèle électrique.** — Nous sommes maintenant en mesure de définir le modèle électrique dont le comportement puisse se représenter du point de vue formel par les relations (10) et (12). Il y a pour cela une condition nécessaire : Y. Rocard [9] a montré que, dans le cas de systèmes couplés dont les paramètres dérivent d'un potentiel, la conséquence de l'existence des énergies potentielle et cinétique est que les termes de couplage sont nécessairement symétriques. En l'espèce, les seconds membres de (10) et (12) ne peuvent être tels que sous la condition

$$\frac{\mathrm{d}^2 i}{\mathrm{d}t^2} \approx \rho\left[\omega I \cos\omega t + \frac{1}{2}\frac{\mathrm{d}I}{\mathrm{d}t}\sin\omega t\right]$$

ρ étant un scalaire indépendant du temps, et comme $i(t)$ a la forme (6), on en déduit que la représentation par un modèle électrique n'est possible que si $\rho = -\omega$, donc $\rho \# -\omega_0$, et si

$$\mathrm{d}I/\mathrm{d}t \ll \omega_0 I.$$

C'est cette dernière loi de variation qui, dans le cas d'une charge capacitive, se trouve exprimée ipso-facto comme nous l'avons vu dans l'équation (5). En introduisant la susceptibilité paramagnétique statique $\chi_0 = m_0/\mu_0 H_0$ l'équation (10a) prend alors la forme [1] :

$$\left\{\frac{\mathrm{d}^2}{\mathrm{d}t^2} + \frac{2}{T_2}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + \left(\omega_0^2 + \frac{1}{T_2^2}\right)\right\} m_1$$
$$= -\frac{\gamma K m_3}{\omega_0}\frac{\mathrm{d}^2 i}{\mathrm{d}t^2} = -\mu_0\,\chi_0\,K\frac{m_3}{m_0}\cdot\frac{\mathrm{d}^2 i}{\mathrm{d}t^2}. \qquad (13)$$

On obtiendrait un résultat identique avec la deuxième composante du courant, en sin ωt, que suggère la forme (4) et la linéarité des équations en conserve également la validité pour le courant total.

L'ensemble des relations (12) et (13) permet de bâtir entièrement le réseau équivalent. Il comprend deux mailles couplées par une mutuelle inductance (*fig.* 2), la première d'entre elles, parcourue par le courant $i_1 = i(t)$, étant formée évidemment par une inductance L_1 et une résistance R_1 identiques à celles, L et R, de la bobine, placées en série avec la capacité $C_1 = C = \omega_{\mathrm{R}}^{-2} L^{-1}$. Il existe une certaine souplesse dans la représentation de la maille 2, puisque les seuls paramètres déterminants sont sa fréquence propre et sa surtension, et les valeurs des éléments résultent en fait de la convention de correspondance adoptée pour son courant i_2. Nous en profitons pour poser arbitrairement $L_1 = L_2 = L$ et obtenons ainsi

Inductance $L_2 = L$ Capacité $C_2^{-1} = L[\omega_0^2 + (1/T_2^2)]$
Résistance $R_2 = 2L/T_2$
Courant $i_2 = \frac{m_1}{K}\sqrt{4\pi\eta . m_0/\chi_0 m_3}$
Inductance mutuelle : $\mathcal{M} = L\sqrt{4\pi\eta\chi_0 m_3/m_0}$

ou coefficient de couplage :

$$z = \mathcal{M}/\sqrt{L_1 L_2} = \sqrt{4\pi\eta\chi_0 m_3/m_0} \qquad (15)$$

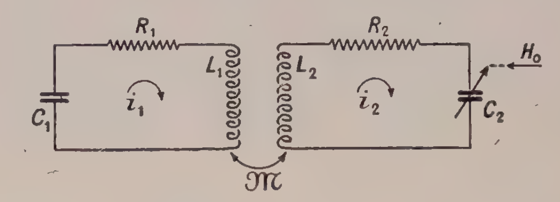


Fig. 2. — Modèle équivalent en évolution libre.

Dans la figure 2, la traduction champ/fréquence s'opère par les variations de la capacité C_2 avec la loi [2] :

$$1/C_2 = f(H_0) = L[(1/T_2^2) + \gamma^2 H_0^2]. \qquad (16)$$

III. GÉNÉRALISATION. ÉVOLUTION FORCÉE DU SYSTÈME COUPLÉ.

A. **Évolution forcée.** — Nous avons utilisé jusqu'à présent une hypothèse assez contraignante, selon laquelle la charge de la bobine était constituée par un unique condensateur, et nous nous proposons d'étendre l'étude au cas le plus général d'une charge quelconque, représentée par un opérateur fonctionnel linéaire Z_{op}, qui peut inclure en outre une source de tension $e(t)$ (ou de courant) donnant lieu à un régime forcé. Le spectre de Fourier de la source peut comporter une ou plusieurs raies ainsi qu'une partie continue, et nous introduisons cette unique restriction que, pour que des transitions puissent être induites, ce spectre devra posséder une densité notable dans le voisinage de la fréquence de Larmor.

Dans le réseau ainsi défini, le courant qui traverse la bobine est soumis à la relation

$$\left\{L\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} + Z_{\mathrm{op}}\right\} i_1 = e(t) - 4\pi\eta\frac{L}{\mu_0 K}\frac{\mathrm{d}m_1}{\mathrm{d}t} \qquad (17)$$

[1] On a choisi a dessein une grandeur sans dimensions, car $8\pi\chi_0 = \dfrac{m_0 H_0}{\mu_0 H_0^2/8\pi}$.

[2] Bien que $1/T_2^2 \ll \gamma^2 H_0^2$ nous avons conservé la valeur exacte en vue d'éventuels calculs de précision.

et si sa densité spectrale est définie par

$$I(\omega) = (1/2\pi) \int_{-\infty}^{+\infty} i_1(t)\, e^{-i\omega t}\, dt \tag{18}$$

le champ moyen qu'il crée dans le volume de l'échantillon prend la forme

$$\boldsymbol{H} = K \int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega)\, \varepsilon^{i\omega t}\, d\omega . \boldsymbol{e}_1. \tag{19}$$

Dans la bande de fréquences cycliques infiniment étroite centrée sur ω et de largeur $d\omega$, il correspond à la composante élémentaire $\boldsymbol{dH}(\omega)$ de ce champ rectiligne une vibration circulaire plane de sens convenable dont il est facile de trouver l'expression, soit pour γ positif (voir Appendice) :

$$\boldsymbol{dH}^*(\omega) = \frac{1}{2} K I(\omega)\, \varepsilon^{i\omega t} \left[\boldsymbol{e}_1 + i \frac{\omega}{|\omega|} \boldsymbol{e}_2\right] d\omega, \text{ avec } i^2 = -1 \tag{20}$$

et, si nous supposons remplies les conditions de linéarité des équations de Bloch, nous sommes conduits, en vertu de la règle de superposition, à écrire ces équations sous la forme

$$\left\{\frac{d}{dt} + \frac{1}{T_2}\right\} m_1 = \omega_0\, m_2 - \frac{1}{2} \gamma K m_3 \int_{-\infty}^{+\infty} i \frac{\omega}{|\omega|} I(\omega)\, \varepsilon^{i\omega t}\, d\omega \tag{21a}$$

$$\left\{\frac{d}{dt} + \frac{1}{T_2}\right\} m_2 = -\,\omega_0\, m_1 + \frac{1}{2} \gamma K m_3 \int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega)\, \varepsilon^{i\omega t}\, d\omega \tag{21b}$$

$$\left\{\frac{d}{dt} + \frac{1}{T_1}\right\} m_3 \# \frac{m_0}{T_1}. \tag{21c}$$

On en tire par élimination de m_2

$$\left\{\frac{d^2}{dt^2} + \frac{2}{T_2}\frac{d}{dt} + \left(\omega_0^2 + \frac{1}{T_2^2}\right)\right\} m_1 = \frac{1}{2} \gamma K \int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega)\, \varepsilon^{i\omega t} \left[m_3(|\omega| + \omega_0) + i \frac{\omega}{|\omega|} \left(m_3\left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right) - \frac{m_0}{T_1}\right)\right] d\omega. \tag{22}$$

Remarquons tout d'abord que le terme imaginaire situé entre les crochets du second membre est de l'ordre de m_3/T_2, donc très inférieur à $\omega_0\, m_3$, ce qui permet de le négliger (*). Si, en première approximation, on négligeait la lente variation temporelle de m_3 et en tenant compte de ce que $1/T_2^2 \ll \omega_0^2$, on pourrait exprimer la solution de (22) sous la forme du terme spectral de m_1 :

$$M_1(\omega) \# \frac{1}{2} \gamma K m_3 \frac{I(\omega)\, [|\omega| + \omega_0]}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\, 2\omega/T_2} \tag{23}$$

et la forme du dénominateur nous montre que ce terme n'est vraiment important que dans une bande très étroite comprise entre $\omega_0 - (1/T_2)$ et $\omega_0 + (1/T_2)$. Dans ces conditions, cet effet de filtrage des spins nous autorise à remplacer dans (22) $[\omega_0 + |\omega|]$ par $2\omega^2/\omega_0$ ce qui n'affectera aucunement l'argument de $M_1(\omega)$ et introduira une erreur infime sur son module. Comme d'autre part

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \omega^2 I(\omega)\, e^{i\omega t}\, d\omega \equiv -\frac{d^2}{dt^2} i(t)$$

l'équation (22) se transforme finalement en une équation identique à (13). Les résultats acquis dans le cadre de l'évolution libre s'appliquent donc à l'évolution forcée, et, tenant compte de (17) et (21c) nous adoptons comme schéma équivalent au système formé par une bobine et un échantillon gyromagnétique celui de la figure 3, dont les éléments sont déjà définis par (14) et (15).

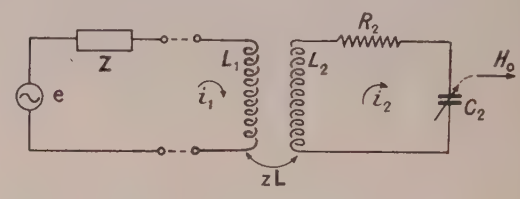


Fig. 3. — Modèle équivalent dans le cas général.

Ce modèle est valable aussi bien en régime permanent que transitoire. Il offre ceci de particulier que le coefficient de couplage (15) est une variable susceptible de dépendre du temps par l'intermédiaire du rapport $[m_3/m_0]^{1/2}$.

1. Régime permanent. — Le coefficient de couplage est constant d'après (21c) et lorsque le facteur de saturation est faible, $m_3/m_0 \# 1$. Si l'on veut améliorer l'approximation, il est facile d'adopter la solution exacte des équations de Bloch (cf. M. Soutif [13]) soit pour $i(t) = I_1 \cos(\omega t + \varphi)$:

$$\frac{m_3}{m_0} = \frac{1 + T_2^2(\omega - \omega_0)^2}{1 + T_2^2(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{4}\gamma^2 K^2 I_1^2\, T_1\, T_2}.$$

Seuls sont touchés par cette correction le coefficient de couplage et le coefficient de proportionnalité entre courant et composante axiale de l'aimantation.

2. Régime transitoire. — Dans certains cas seulement, si la valeur initiale m_3^0 de m_3 au temps 0 diffère par trop de sa valeur d'équilibre m_0, le coefficient de couplage varie avec le temps.

La loi suivant laquelle m_3 tend vers m_0 est

$$m_3/m_0 = 1 + [(m_3^0/m_0) - 1] \exp\frac{-t}{T_1}$$

et comme $T_1 \gg \omega_0^{-1}$, le couplage demeurera pratiquement constant pendant un grand nombre de périodes, ce qui permet de traiter de façon simple

(*) Cette hypothèse serait fausse dans le cas où $m_3 < m_0/\omega_0\, T_2$, (mis à part le cas de saturation totale qui ne présente aucun intérêt) ce qui correspondrait à un désalignement du moment par rapport à sa position d'équilibre égal à 90° à quelques minutes d'arc. Ce dernier état est peu probable et en tous cas de très faible durée de vie.

le régime transitoire du réseau à paramètres variables.

B. **Cas d'une polarisation négative.** — Plusieurs procédés ont été proposés qui fournissent un renversement π des populations de spins nucléaires, soit par prépolarisation (H. Benoît et J. Hennequin [10]), soit par polarisation dynamique (A. Abragam et all. [11]) (*). Comme ces procédés s'accompagnent d'une très forte augmentation de l'amplitude de la polarisation, ils s'avèrent d'un grand intérêt dans la réalisation de transducteurs de type « MASER » en champs faibles.

L'aimantation à l'équilibre dans un champ permanent y prend une direction opposée à celle du champ, $-m_0\, \mathbf{e}_3$, et comme l'évolution macroscopique en présence d'une polarisation quasi-stationnaire est toujours régie par le schème de Bloch, la seule modification à introduire dans les calculs précédents est d'y considérer la susceptibilité paramagnétique statique χ_0 comme une valeur négative. Dans le schéma de la figure 3, le coefficient de couplage devient alors une grandeur imaginaire, ceci d'après (15) :

$$z' = \mathcal{M}/\sqrt{L_1 L_2} = i\sqrt{4\pi\eta|\chi_0|}\, m_3/m_0. \qquad (15\ bis)$$

Les éléments du circuit demeurent réels, mais la relation de correspondance courant/aimantation, d'ailleurs conventionnelle, est imaginaire.

Ces résultats paraissent logiques, si l'on considère la nécessité de rendre compte de la fourniture d'énergie qu'opère dans ce cas le système de spins.

C. **Possibilités d'extension.** — Il est relativement aisé d'étendre le schéma équivalent d'un réseau électrique en interaction avec un système de spins à des montages plus complexes mettant en œuvre plusieurs bobinages, dans le cas où leurs axes demeurent parallèles.

Il n'en est pas de même dans le cas contraire, et en particulier, celui du montage de Bloch à bobines croisées. L'étude du groupe d'équations différentielles, auxquelles conduit un calcul analogue au précédent, montre alors l'existence de termes de couplages de signes opposés, du type de ceux que Y. Rocard nomme « termes gyroscopiques » [9]. On sait qu'il est alors impossible de rendre compte du comportement de l'ensemble, dans les conditions les plus générales, par un modèle purement électrique. Si l'on se limite aux seuls régimes stationnaires, on peut par contre bâtir un tel modèle en y introduisant un simple élément déphaseur, dont la présence correspond au décalage temporel des composantes, suivant chaque bobine, de l'aimantation macroscopique lors de son mouvement de précession.

(*) On trouvera une excellente étude d'ensemble de ces procédés dans un récent article de P. Grivet [12].

IV. CONDITIONS DE VALIDITÉ.

A. Les conditions de validité sont tout d'abord celles même que Bloch a introduites pour poser ses équations [*loc. cit*], à savoir :

— On supposera que l'équilibre thermique entre spins et milieu est établi dans le champ permanent H_0 au moment où l'on applique le champ transversal. Cette condition n'implique pratiquement qu'une restriction très limitée dans l'emploi du modèle électrique appliqué à un transducteur.

— Homogénéité du champ permanent : implicitement, la valeur adoptée pour T_2 peut tenir compte de l'inhomogénie, à condition qu'elle soit faible et contribue à un élargissement modéré de la raie naturelle. Autrement dit, dans le cas des liquides, le champ moléculaire devra constituer le processus de relaxation dominant, de façon à ce que la décroissance des composantes transversales de l'aimantation conserve un caractère exponentiel, celui qu'implique le réseau électrique dissipatif employé dans la représentation. Sinon le modèle ne pourra convenir à tous les cas d'expérience et il serait nécessaire de le compléter en introduisant une répartition de fréquences propres sur un ensemble de mailles de spin, de préférence continu, ce qui ne présente plus aucun intérêt pratique.

B. Nous avons rencontré également au cours de ce calcul d'autres restrictions qu'il reste à étudier. Tout d'abord nous avons posé, à propos de l'équation (2), que la stabilité à court terme du champ « permanent » devait être telle que

$$\left|\frac{1}{H_0}\frac{\mathrm{d}H_0}{\mathrm{d}t}\right| \ll \frac{1}{T_2}.$$

Nous pouvons considérer que ce champ comporte une partie fixe $< H_0 >$ à laquelle se superpose une partie fluctuante, de nature plus ou moins aléatoire $\varepsilon(t)$ beaucoup plus petite que la première. On voit alors que la condition précédente, qui équivaut à $\left|\frac{1}{\varepsilon}\frac{\mathrm{d}\varepsilon}{\mathrm{d}t}\right| \ll \frac{1}{T_2}\,\frac{< H_0 >}{\varepsilon}$ sera toujours très largement remplie, et d'ailleurs la mesure de H_0 perdrait autrement toute signification.

C. En outre, nous avons admis la possibilité de remplacer, dans l'équation (22) la quantité

$$\frac{|\omega| + \omega_0}{\omega_0} \text{ par } 2\omega^2/\omega_0^2.$$

Cette approximation implique une erreur de représentation si ω s'écarte trop de la fréquence de Larmor ω_0. Deux cas sont à étudier, suivant que le spectre du courant est discret ou continu :

1. Régime stationnaire. — Supposons que le spectre soit constitué par une raie unique centrée sur $\pm\ \omega_1$, avec $\omega_1 \sim \omega_0$.

On sait [13] que dans le cas d'une perturbation périodique, la solution exacte des équations de Bloch conduit à décrire la variation d'impédance de la bobine entourant l'échantillon par la relation :

$$\Delta Z_{11} = 2\pi\eta\chi_0\, \omega_0\, T_2 \frac{m_3}{m_0} . L\omega_1 . \frac{1}{1 - iT_2(\omega_0 - \omega_1)} .$$

En utilisant le circuit équivalent de la figure 3, cette variation d'impédance apparaît comme due à l'impédance couplée $(zL\omega_1)^2/Z_{22}$ qui s'écrit, suivant les équations (14) et (15) :

$$\Delta Z_{11} = 2\pi\eta\chi_0\, \omega_0\, T_2 \frac{m_3}{m_0} . L\omega_1 . \frac{\omega_1/\omega_0}{1 - i\frac{T_2}{2\omega_1}\left[\omega_0^2 - \omega_1^2 + \frac{1}{T_2^2}\right]} .$$

On voit, par comparaison, que l'approximation conduit à trois sortes d'erreurs :

a) Une erreur sur le centrage de la résonance, $\delta\omega_0/\omega_0 \# (1/2)(\omega_0 T_2)^{-2}$. Elle sera le plus souvent très inférieure à 10^{-8}, donc entièrement négligeable.

b) Une erreur sur la forme de la raie d'absorption, qui n'est plus exactement lorentzienne. Sa valeur relative, de l'ordre de $[\omega_1 - \omega_0]^2/8\omega_0^2$, est inappréciable pour des désaccords atteignant déjà plusieurs dizaines de largeurs de raie. Elle n'est sensible que sur la « queue » de la raie, mais il faut remarquer que c'est également dans ce domaine qu'est discutable la forme même de Lorentz à laquelle conduisent les équations de Bloch. On sait (cf. Y. Ayant [14], [15]) que, même dans le cas de liquides à faible viscosité, l'influence du temps de corrélation de Debye est susceptible de se manifester pour les grandes valeurs de $|\omega_1 - \omega_0|$, et il est plus vraisemblable que la raie d'absorption ait une forme générale de Lorentz avec des queues gaussiennes.

Le modèle électrique peut donc être considéré comme satisfaisant à cet égard pour l'étude du fonctionnement en transducteur, la nécessité dans ce cas d'une énergie d'interaction appréciable entre le champ électromagnétique et le système de spins impliquant en effet une fréquence de travail telle que $T_2|\omega_0 - \omega_1|$ soit de l'ordre de l'unité.

c) Une erreur sur l'amplitude, due au facteur ω_1/ω_0 que nous négligerons pour les mêmes raisons.

2. Régime transitoire. — Nous pouvons décomposer le spectre de fréquences du courant i_1 en trois parties principales :

a) $0 < |\omega| < 1/T_1$. L'évolution très lente qui correspond à cette bande conserve l'équilibre thermique entre spins et milieu et se traduit par un vecteur d'aimantation macroscopique parallèle et proportionnel au champ magnétique résultant. Il y a donc rotation et variation de norme de cette aimantation. L'effet en est négligeable si le champ transversal est faible, sinon le modèle électrique, qui ne peut en rendre compte, devra faire place au calcul direct.

b) $1/T_1 < |\omega| < \omega_0$. La perturbation introduite par cette partie du spectre répond au critère de validité du théorème adiabatique. La répartition des populations entre sous-niveaux Zeeman est donc sensiblement la même qu'en l'absence de perturbation, mais l'axe de quantification évolue parallèlement au champ résultant, ce qui traduit par une rotation du vecteur aimantation macroscopique sans variation de sa norme. Si la densité spectrale est du même ordre dans cette bande qu'autour de ω_0, il correspond à $H(\omega)\, e^{i\omega t}\, d\omega$ une variation

$$dm_1 \approx \mu_0\, \chi_0\, H(\omega) . d\omega$$

entièrement négligeable par rapport à ce que fournit le voisinage de ω_0 correspondant

$$dm_1 \approx \frac{1}{2} \mu_0\, \chi_0\, \omega_0\, T_2\, H(\omega) . d\omega .$$

Mais si la majeure partie de l'énergie est répartie dans la bande adiabatique, le résultat ci-dessus cesse d'être valable et le phénomène de rotation dominera celui de résonance. D'ailleurs, à moins de conditions expérimentales défavorables, cette partie du spectre proviendra d'événements séparés dans le temps de ceux susceptibles d'induire des transitions. On pourra alors traiter les rotations adiabatiques par le calcul direct et le modèle électrique sera utilisé à l'étude des variations non-adiabatiques, en prenant pour conditions initiales celles fournies par ce calcul.

c) $|\omega| \sim \omega_0$ et $|\omega| > \omega_0$. Cette troisième bande entre dans le cadre des « modifications soudaines » de l'état dynamique du système de spins. C'est là seule qui intervienne dans l'interaction avec le champ électromagnétique dont tient compte le schéma électrique étudié. On a vu par l'équation (23) l'extrême étroitesse de la bande de fréquences qui intéresse les transitions entre niveaux énergétiques. De ce fait, et plus encore que dans le cas stationnaire, le remplacement de $\frac{|\omega| + \omega_0}{\omega_0}$ par $2\omega^2/\omega_0^2$ ne peut avoir qu'un effet inappréciable et se justifie pleinement.

D. **Linéarité.** — L'emploi d'un réseau électrique de caractère linéaire pour représenter des phénomènes de nature physique différente ne peut se justifier que si ces phénomènes eux-mêmes sont régis par des lois linéaires, du moins avec une bonne approximation.

Or, nous avons vu que la linéarité des équations de Bloch est détruite par les termes de couplage, dès lors que la composante de l'aimantation suivant le champ permanent dépend de la valeur du champ transversal.

1. Dans le cas de régimes stationnaires, le critère de linéarité est bien connu [4]. Nous l'écrirons :

$$\gamma^2(H/2)^2\, T_1\, T_2 < 1$$

$H = K.I_1$ étant l'amplitude du champ rectiligne sinusoïdal créé par le courant I_1 cos ωt qui circule dans la bobine.

2. La définition d'un tel critère est beaucoup plus délicate lorsqu'il s'agit de perturbations transitoires, et nous allons essayer de l'aborder ici :

Considérons donc une modification soudaine de l'hamiltonien, mise en route au temps $t = 0$ et provoquée par un champ transversal issu d'un courant $i_1(t)$ dont nous supposons la densité spectrale notable autour de ω_0, de telle façon que les probabilités de transitions soient importantes.

Sauf dans un cas unique (oscillation très peu amortie qui, d'ailleurs, si sa largeur spectrale est inférieure à $1/T_2$, pourra se ranger dans le cadre d'une perturbation périodique) le courant i_1 ainsi défini est tel que son spectre est nécessairement très étalé relativement à la largeur de raie.

L'aspect de l'équation (23) nous a montré que l'effet de filtrage des spins est tel que les composantes spectrales situées en dehors de la raie d'absorption ne jouent aucun rôle. On va profiter de cette propriété pour substituer au spectre du courant $i_1(t)$ un autre spectre ayant même allure autour de ω_0, mais dont les parties inopérantes seront adaptées de façon adéquate. On s'arrangera en effet pour faire correspondre à ce spectre de remplacement la transformée d'une fonction du temps de forme simple. Nous calquons ce procédé sur celui qu'on utilise fréquemment dans la Théorie des Réseaux, et qui permet de substituer à une impulsion brève une « impulsion réduite » équivalente du point de vue de ses effets [16]. Dans notre cas cependant, le courant $i_1(t)$ n'a certainement pas la forme idéale d'une impulsion de Dirac et la recherche de son impulsion réduite doit tenir compte dans une certaine mesure de l'évolution du spectre à l'intérieur de la bande d'absorption.

Si $\mathcal{H}(\omega) \equiv H(\omega)\,e^{i\Phi(\omega)}$ est la densité spectrale, à la fréquence cyclique ω, du champ transversal $h(t)$, le fait que ce dernier sera, dans la plupart des cas, créé par un courant issu d'un réseau physiquement réalisable implique, d'après les relations de Bode [17], que la forme du module $H(\omega)$ n'est pas indépendante de celle du facteur de phase $\Phi(\omega)$, qu'il suffit alors de considérer seul.

Si nous représentons l'évolution de Φ autour de ω_0 par un développement en série

$$\Phi(\omega) = \Phi(\omega_0) + (\omega - \omega_0)\,(\mathrm{d}\Phi/\mathrm{d}\omega)_0 + \frac{1}{2}\,(\omega - \omega_0)^2\,(\mathrm{d}^2\,\Phi/\mathrm{d}\omega^2)_0 + \cdots$$

nous pouvons admettre que l'épanouissement du spectre en regard de la bande d'absorption permet de n'en retenir que les deux premiers termes, ce qui constitue la relation d'équivalence de forme :

$$\text{pour } \omega \sim +\omega_0.\quad \Phi(\omega) \# \Phi(\omega_0) + (\omega - \omega_0)\,(\mathrm{d}\Phi/\mathrm{d}\omega)_{\omega=\omega_0}. \tag{24}$$

Notons qu'un étalement satisfaisant, eu égard à notre hypothèse, se traduit par :

$$|\mathrm{d}\Phi/\mathrm{d}\omega|_{\omega=\omega_0} \ll 2\pi T_2. \tag{25}$$

Du module, il suffit de ne retenir que sa valeur à la fréquence cyclique ω_0

$$\text{pour } \omega \sim +\omega_0 \qquad H(\omega) \# H(\omega_0) \tag{26}$$

ce qui permet de conserver l'équivalence énergétique.

Dans le cas où le courant est créé d'une autre manière, nous admettons qu'il est tout de même possible de conserver ces relations d'équivalence en considérant entre autres que les variations de l'argument, plus rapides que celles du module, ont une influence dominante sur la forme de la fonction image.

Nous disposons ainsi, par (24) et (26), de trois paramètres pour définir la fonction que nous allons substituer à $h(t)$ (les équations correspondant à $\omega \sim -\omega_0$ ne sont pas indépendantes des précédentes à cause des propriétés de parité de H et Φ), et cette latitude permet de centrer sur ω_0 le spectre de substitution, ce qui lui fait correspondre une perturbation à la fréquence de Larmor dont l'amplitude est variable avec le temps.

Choisissons par exemple :

$$\begin{cases} h_r(t) = H_r \sin\,(\omega_0 t - \varphi) & \text{pour } 0 < t < \Theta \\ h_r(t) = 0 & \text{partout ailleurs.} \end{cases} \tag{27}$$

Son spectre, par ailleurs bien connu, répondra aux conditions (24) et (26) si l'on écrit :

$$\Theta = -2(\mathrm{d}\Phi/\mathrm{d}\omega)_{\omega=\omega_0} \tag{28a}$$

$$\varphi = -[\Phi(\omega_0) + \pi/2] \tag{28b}$$

$$H_r = -2\pi \bmod \mathcal{H}(\omega_0)\,.\,(\mathrm{d}\Phi/\mathrm{d}\omega)^{-1}_{\omega=\omega_0} \tag{28c}$$

ce qui définit la durée, la phase et l'amplitude de l'impulsion réduite de pulsation ω_0.

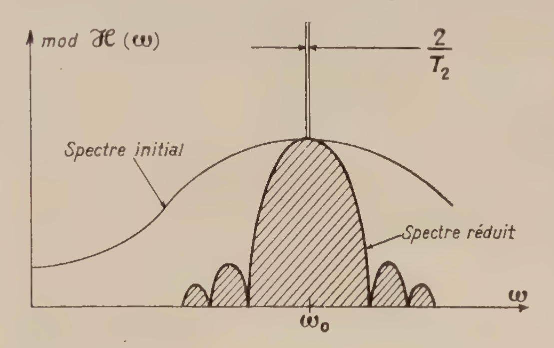


FIG. 4. — Découpage du spectre.

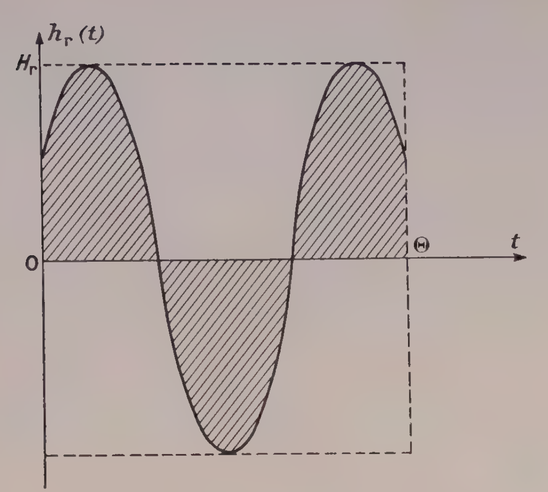


FIG. 5. — Allure de l'impulsion réduite.

La largeur du spectre de $h_r(t)$ est de l'ordre de $4\pi/\Theta$, soit d'après la relation (28a),

$$2\pi|\mathrm{d}\,\Phi/\mathrm{d}\,\omega|^{-1}_{\omega=\omega_0},$$

et en tenant compte de l'hypothèse (25), on voit que cette valeur est grande devant la largeur $2/T_2$ de la raie d'absorption, ce qui justifie l'approximation effectuée.

Traitée dans le référentiel mobile de Rabi [18] tournant à la vitesse angulaire $-\omega_0$ autour de $\boldsymbol{e}_3$, il correspond à l'impulsion réduite un champ transversal ayant la forme d'une impulsion rectangulaire de hauteur $H_r/2$ et de durée Θ. Au temps $t = 0$ l'axe 1 de ce référentiel tournant, choisi suivant la direction du champ transversal, forme avec l'axe 1 correspondant du référentiel fixe l'angle $-\varphi$ défini par (28c).

Au temps $t = \Theta$ le champ transversal s'annulle, le système de spins est alors abandonné à son évolution libre et retrouve son équilibre avec la loi $\exp(-t/T_2)$. C'est donc l'état acquis au temps $t = \Theta$ qui nous renseignera sur la linéarité de la réponse à la perturbation.

La présence, pour t compris entre 0 et Θ, de coefficients constants, permet, comme l'a fait Torrey [19], de soumettre à la transformation de Laplace les équations de Bloch rapportées au repère tournant, ce qui fournit le groupe :

$$(p + 1/T_2)\,\overline{\mu}_1 = 0 \qquad (29a)$$

$$(p + 1/T_2)\,\overline{\mu}_2 + (1/2)\,\gamma H_r\,\overline{\mu}_3 = 0 \qquad (29b)$$

$$p + 1/T_1)\,\overline{\mu}_3 - (1/2)\,\gamma H_r\,\overline{\mu}_2 = \mu_{30} + \mu_0/pT_1, \qquad (29c)$$

Les $\overline{\mu}_i$ représentent les transformées de Laplace,

$$\overline{\mu}_i = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{e}^{-pt}\,\mu_i(t)\,\mathrm{d}t$$

des composantes $\overline{\mu}_i(t)$ de l'aimantation suivant les axes du repère tournant, μ_{30} est la valeur initiale de la composante suivant le champ permanent, et $\mu_0 = m_0$ sa valeur à l'équilibre.

On a par ailleurs : $\mu_1 = \mu_2 = 0$ pour $t \leqslant 0$.

La solution de ces équations fournit pour $\overline{\mu}_3$:

$$\overline{\mu}_3 = \frac{\mu_0\,p^2 + \left(\frac{1}{T_2}\mu_{30} + \frac{1}{T_1}\mu_0\right)p + \frac{\mu_0}{T_1\,T_2}}{p\left[p^2 + \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right)p + \frac{1}{4}\gamma^2 H^2 + \frac{1}{T_1\,T_2}\right]}. \qquad (30)$$

D'après la forme du dénominateur, il apparaît que $\mu_3(t)$ contiendra des facteurs exponentiels avec la constante de temps $2[(1/T_1) + (1/T_2)]^{-1}$.

Or, d'après (28a) et (25), Θ est petit devant T_2 et *a fortiori* devant T_1, ce qui fait que l'évolution de $\mu_3(t)$ pendant la durée de l'impulsion réduite peut être représentée correctement par un développement en série autour de $t = 0$. La propriété bien connue :

$$\lim_{t\to 0}[\mu_i(t)_0] = \lim_{p\to\infty}[\overline{\mu}_i(p)]$$

nous permet de tirer ce dernier du développement asymptotique de (30) :

$$\overline{\mu}_3 = \mu_{30}\cdot\frac{1}{p} + \frac{\mu_0 - \mu_{30}}{T_1}\cdot\frac{1}{p^2} - \left[\frac{\mu_0 - \mu_{30}}{(T_1)^2} + \frac{1}{4}\gamma^2 H_r^2\,\mu_{30}\right]\cdot\frac{1}{p^3} + \cdots$$

ce qui, par transformation inverse, donne immédiatement pour $t = \Theta$:

$$\mu_3(\Theta) = \mu_{30} + (\mu_0 - \mu_{30})\frac{\Theta}{T_1} - \frac{1}{2}\left[(\mu_0 - \mu_{30}) + \frac{1}{4}\gamma^2 H_r^2 (T_1)^2\,\mu_{30}\right]\left(\frac{\Theta}{T_1}\right)^2 + \cdots \qquad (31)$$

L'influence de H_r apparaît dans (31) à partir du terme quadratique, ce qui permet de prendre comme critère de linéarité :

$$\frac{1}{4}\gamma^2 H_r^2\,\Theta^2 < 1 + \left(\frac{m_0}{m_{30}} - 1\right)\frac{\Theta}{T_1}. \qquad (32)$$

Dans la grande majorité des cas, m_{30} diffèrera suffisamment peu de m_0 pour que le second membre reste très voisin de 1. Nous en déduisons alors un résultat très simple : la condition nécessaire pour conserver leur linéarité aux équations de Bloch en régime transitoire est indépendante de l'allure exacte de $h(t)$ et se résume, d'après (32), (28a) et (28c) à :

$$2\pi|\gamma|\ \mathrm{mod}\ \mathcal{H}(\omega_0) < 1 \qquad (33a)$$

soit :

$$\mathrm{mod}\left[\gamma\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{e}^{-\omega_0 t}\,h(t)\,\mathrm{d}t\right] < 1. \qquad (33b)$$

La comparaison entre cette condition et le critère de non-saturation en régime stationnaire, montre que T_1 et T_2 n'interviennent plus. Ce résultat paraît justifié si l'on considère que la durée de

la perturbation transitoire est nécessairement brève devant l'une ou l'autre de ces quantités.

N. B. — Si, au contraire, la valeur initiale de m_3 était très faible devant $m_0 . \Theta / T_1$, il faudrait tenir compte indirectement de l'allure de $h(t)$ par l'intermédiaire de la vitesse de variation de l'argument de son spectre autour de ω_0. La condition de linéarité deviendrait :

$$[2\pi\gamma \bmod \mathcal{H}(\omega_0)]^2 < \frac{m_0}{m_{30}} \frac{1}{T_1} \left| \frac{\mathrm{d}\Phi}{\mathrm{d}\omega} \right|_{\omega=\omega_0}.$$

Il semble d'ailleurs que ce dernier cas ne puisse correspondre qu'à des perturbations dont l'allure se rapproche davantage de celle des perturbations quasi-stationnaires (Θ et donc $\mathrm{d}\Phi / \mathrm{d}\omega$ importants).

V. **Fluctuations thermiques.** — Le bruit de fluctuations thermiques dans le circuit électrique utilisé pour la mise en évidence des phénomènes gyromagnétiques peut être attribué à la résistance R_1 de ce circuit, avec une densité spectrale énergétique à la température T du circuit donnée par la relation de Nyquist : $E^2(\nu) = 4kTR_1$ (*).

La présence de la résistance R_2 dans le modèle équivalent de la figure 3 suggère de lui attribuer un bruit propre dont l'origine réelle ne peut être évidemment due qu'à des fluctuations dans la répartition des populations des niveaux Zeeman. Il est alors nécessaire de vérifier si les valeurs calculées au moyen du modèle équivalent s'accordent avec la réalité physique.

Sous un aspect macroscopique, considérons le moment magnétique résultant $\boldsymbol{M}$ en présence du champ permanent $\boldsymbol{H}_0$, en équilibre thermique à la température T' du milieu et soumis en outre au champ de rayonnement isotherme incohérent. Il en résulte des fluctuations autour de sa position d'équilibre, qui, en dehors de la bande de fréquences de 0 à $1/T_1$, laissent invariante la norme de $\boldsymbol{M}$:

$$\sum^{1} (m_1)^2 = (m_0)^2 = \mu_0^2 \chi_0^2 H_0^2.$$

L'énergie potentielle du système par unité de volume

$$W_p = -(\boldsymbol{M}\,\boldsymbol{H}_0) \# - m_0 H_0 \left[1 - \frac{(m_1)^2 + (m_2)^2}{2(m_0)^2} + \dots\right]$$

aurait pour valeur à l'état « figé » : $W_0 = - m_0 H_0$.

Comme le système macroscopique possède deux degrés de liberté il en résulte une énergie moyenne de fluctuation dans le volume τ de l'échantillon qui vaut :

$$\tau . \bmod (< W_p > - W_0) = kT'$$

et en vertu de l'équipartition, on en déduit la variance des composantes :

$$< (m_1)^2 > = < (m_2)^2 > = \mu_0 \frac{kT'}{\tau} |\chi_0|.$$

(*) k représente ici la constante de Boltzmann.

Ce résultat sera conservé lors du mouvement de précession causé par la présence supplémentaire d'un rayonnement cohérent, tant que la valeur moyenne de l'angle entre $\boldsymbol{M}$ et $\boldsymbol{H}_0$ reste faible. Alors, d'une part, la température des spins demeure très voisine de celle du milieu et, d'autre part, les équations de Bloch demeurent linéaires et autorisent ainsi l'emploi du modèle électrique équivalent.

Ce modèle fournit justement, en appliquant la formule de Nyquist à la maille 2 considérée comme isolée ($i_1 = 0$) la relation

$$< i_2 i_2^* > = kT' / L_2$$

soit, d'après le tableau de correspondance (14) :

$$< (m_1)^2 > = (\mu_0^2 K^2 / 4\pi\eta L) . kT' |\chi_0|.$$

Or il est facile de voir, d'après les définitions de K et de η du § C, que $\mu_0^2 K^2 / 4\pi\eta L \# \mu_0 / \tau$, ce qui conduit pour $< (m_1)^2 >$. aux mêmes résultats que précédemment.

Ainsi le modèle électrique, qui fournit la même variance et le même caractère « microscopique » de la fonction de corrélation, s'avère-t-il parfaitement apte à traduire quantitativement et jusque dans leurs ultimes conséquences tous les phénomènes de fluctuations.

VI. CONCLUSION.

Nous avons pu voir qu'une équivalence analytique entre un montage à résonance magnétique nucléaire et un réseau électrique de structure particulièrement simple paraît se justifier pour des conditions d'emploi qui sont celles d'un appareil destiné à la seule mesure d'un champ magnétique : stabilité et homogénéité du champ, en relation même avec la nécessité d'une définition précise de l'objet de la mesure, et travail dans une bande de fréquences évidemment voisine de la fréquence de Larmor, ou dans le cas transitoire, respect du critère de non-adiabaticité.

Bien qu'il s'agisse en fait d'une fiction mathématique qui ne peut prétendre se substituer en tous points au traitement physique, le fait que l'emploi du modèle équivalent puisse s'étendre au régime transitoire est d'un grand intérêt, en ce sens que les problèmes délicats d'adaptation ou d'interprétation qu'on y rencontre peuvent trouver une solution simple au moyen des méthodes de calcul connues de la Théorie des Réseaux. Citons par exemple l'effet complexe d'amortissement par rayonnement cohérent [1] qui, par l'intermédiaire du circuit équivalent, peut être ramené à l'étude classique de l'évolution libre de deux mailles couplées.

De même, en régime stationnaire, les relations d'équilibre d'un pont, les conditions d'oscillation

d'un « Maser » en champ faible [6], [10], ou l'effet d'entraînement de fréquence [20], etc... peuvent être traités quantativement de manière très simple.

APPENDICE

Champ tournant déduit d'un spectre de bande. — Considérons, dans le repère de la figure 1, un champ magnétique transversal rectiligne, dont l'expression en intégrale de Fourier s'écrit :

$$\boldsymbol{h}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} H(\omega)\, e^{i\omega t}\, d\omega . \boldsymbol{e}_1.$$

Si l'on choisit une bande de fréquences cycliques infiniment étroite, centrée sur ω et de largeur $d\omega$, la composante élémentaire

$$\boldsymbol{dh} = H(\omega)\, e^{i\omega t}\, d\omega . \boldsymbol{e}_1$$

représente un champ oscillant rectiligne cisoïdal qu'on écrira :

$$\boldsymbol{dh} = H(\omega) \left[\cos \omega t + i \frac{\omega}{|\omega|} \sin |\omega| t\right] d\omega . \boldsymbol{e}_1. \quad (34)$$

A ce champ rectiligne on peut faire correspondre deux vibrations à polarisation circulaire, et si l'on ne retient que celle dont le sens est convenable, en relation avec le signe du rapport gyromagnétique des noyaux étudiés, on obtiendra un vecteur élémentaire $\boldsymbol{dh}^*$ ayant une vitesse de rotation

$$\boldsymbol{\Omega} = -\gamma \left| \frac{\omega}{\gamma} \right| \boldsymbol{e}_3.$$

Dans cete correspondance, la contribution du terme de (34) en $\cos \omega t$ est (on suppose γ positif) :

$$\frac{1}{2} H(\omega) [\cos \omega t . \boldsymbol{e}_1 - \sin |\omega| t . \boldsymbol{e}_2]\, d\omega.$$

Celle du terme en $\sin |\omega| t$:

$$\frac{i}{2} H(\omega) [\sin |\omega| t . \boldsymbol{e}_1 + \cos \omega t . \boldsymbol{e}_2] \frac{\omega}{|\omega|}\, d\omega.$$

Soit au total :

$$\boldsymbol{dh}^* = \frac{1}{2} H(\omega)\, e^{i\omega t} \left[\boldsymbol{e}_1 + i \frac{\omega}{|\omega|} \boldsymbol{e}_2\right] d\omega. \quad (35)$$

Manuscrit reçu le 23 novembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Bloembergen (N.) et Pound (R. V.), *Phys. Rev.*, 1954, **95**, n° 1, 8.
[2] Carter (P. D.) (Stanford U. S. A.) « Magnetically tunable filter employing a single crystal garnet. » (A paraître).
[3] Brunner (G.) et Loesche (A.), *Z. Physik*, 1954, **139**, 569-577.
[4] Bloch (F.), *Phys. Rev.*, 1946, **70**, 460.
[5] Freycenon (J.) et Solomon (I.), *Onde Electr.*, septembre 1960, **402**, 590-595.
[6] Solomon (I.), « Théorie de l'auto-oscillateur nucléaire utilisé pour la mesure du champ magnétique terrestre. » (A paraître dans *J. Physique Rad.*).
[7] Bloch (F.) et Siegert (A.), *Phys. Rev.*, 1940, **57**, 522.
[8] Jacobsohn (B. A.) et Wangsness (R. K.), *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 9, 942.
[9] Rocard (Y.), « Dynamique générale des vibrations », Masson éd., Paris, 1949.
[10] Benoit (H.) et Hennequin (J.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1959, **248**, 1991-1993.
[11] Abragam (A.), Combrisson (J.) et Solomon (I.) *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1957, **245**, 157-160.
[12] Grivet (P.), Comm. Colloque A. M. P. E. R. E., Pise, 1960.
[13] Soutif (M.), *J. Physique Rad.*, 1949, sér. VIII, **10**, 61-78.
[14] Ayant (Y.), dans « Résonance paramagnétique nucléaire » (Grivet P.), C. N. R. S., Paris, 1955.
[15] Ayant (Y.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1955, **240**, 2230-2232.
[16] Blaquière (A.), *Ann. Radioélectricité*, 1953, **8**, n° 31, 36-80.
[17] Bode (H. W.), *Bell Syst. Tchn. J.*, 1940, **19**, 421.
[18] Rabi (I. I.), Ramsey (N. F.) et Schwinger (J.), *Rev. Mod. Physics*, 1954, **26**, n° 2, 167-171.
[19] Torrey (H. C.), *Phys. Rev.*, 1949, **76**, n° 8, 1059-1068.
[20] Gordon (J. P.), Zeiger (H. J.) et Townes (C. H.), *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 4, 1264-1274.

DÉVELOPPEMENT DU MOMENT DIPOLAIRE DES MOLÉCULES EN FONCTION DES COORDONNÉES DE SYMÉTRIE. I.

Par Georges GRANER,
Laboratoire d'Infrarouge, 12, rue Cuvier, Paris (5e)
(Laboratoires de Chimie Physique).

Résumé. — On rappelle l'état actuel des calculs sur les intensités des bandes d'absorption infrarouge, pour les molécules di- et polyatomiques, en mettant numériquement en évidence l'importance relative des différents termes du développement du moment dipolaire.

Abstract. — The present state of computations on intensities of infrared absorption bands is reviewed, for di-and polyatomic molecules, showing the relative importance of diverse terms of development of the dipole moment.

I. GÉNÉRALITÉS.

1-1. **Introduction.** — Les mesures d'intensité des bandes d'absorption dans le domaine infra-rouge présentent un intérêt croissant dans différents domaines : astrophysique, cinétique chimique, analyse de la structure moléculaire...

En effet, les intensités font intervenir directement les populations des divers niveaux énergétiques, ce qui permet des évaluations de température, le moment dipolaire, qui donne des renseignements importants sur la liaison chimique, les densités optiques enfin, ce qui permet d'estimer l'abondance de certaines molécules ou radicaux libres dans des flammes ou des atmosphères planétaires.

La technique des mesures d'intensité a fait de sérieux progrès. On sait maintenant, non seulement faire des mesures pour toute une bande de vibration-rotation, mais, dans des mesures en phase gazeuse, pour chacune des raies de rotation de cette bande : ceci est maintenant possible grâce aux spectrographes très résolutifs en usage et aux techniques de correction des largeurs de fente. Nous n'insisterons pas sur cet aspect de la question, si ce n'est pour dire que la précision des mesures d'intensité, qui atteint quelques pour cent pour des raies larges dans les cas les meilleurs, reste très médiocre dans les autres cas.

D'autre part, les mesures de dispersion d'indice fournissent des informations supplémentaires, voisines de celles que donnent les intensités [1].

Le calcul théorique des intensités permet d'exploiter les informations apportées par les mesures. Compte tenu de sa difficulté, on ne l'a développé jusqu'à ces dernières années que pour les molécules diatomiques. Cependant, le problème des intensités des molécules polyatomiques commence à être abordé, en particulier, celui des molécules linéaires.

Nous voudrions exposer rapidement les données du problème en mettant en évidence le rôle des développements en série du moment dipolaire.

1-2. **Théorie des intensités.** — L'intensité d'absorption théorique correspondant à une transition d'un niveau énergétique τ'' à un état τ' est donnée par :

$$I_{\tau''\tau'} = \frac{8\Pi^3\,\nu}{3hc}\cdot\frac{N''}{g''}\,(1 - e^{-h\nu/KT}) < \tau'|\vec{M}|\tau'' >^2 \quad (1)$$

où h est la constante de Planck ; c, la vitesse de la lumière ; ν, la fréquence en cm^{-1} de la transition $\tau'' \rightarrow \tau'$; N'', la population du niveau initial ; g'', son degré de dégénérescence ; K la constante de Boltzmann ; T, la température absolue du corps absorbant.

Considérons une bande de vibration correspondant à un saut de n unités pour le nombre quantique de vibration v. On est amené à calculer $< v + n|\vec{M}|v >^2$.

Soit M_α les projections de $\vec{M}$ sur les axes Ox, Oy, Oz liés à la molécule ($\alpha = x, y, z$). On a

$$< v + n|\vec{M}|v >^2 = \sum_\alpha < v + n|M_\alpha|v >^2. \quad (2)$$

On est donc ramené au calcul de trois moments de transition $< v + n|M_\alpha|v >$ c'est-à-dire :

$$\int \Psi^*_{v+n}\,.\,M_\alpha\,.\,\Psi_v\,.\,d\tau.$$

1-3. **Intensité des molécules diatomiques.** — Pour les molécules diatomiques, il suffit de considérer la composante M_z de $\vec{M}$ sur la droite joignant les noyaux. L'intensité est donc proportionnelle à

$< v + n|M_z|v >^2$ pour la transition $v \to v + n$ ou à $\sum_{v=0}^{\infty} < v + n|M_z|v >^2$ pour l'ensemble de la bande.

C'est à ces calculs d'intensité, toujours relatifs aux intensités intégrées des bandes de vibration, que se rapportent les travaux les plus anciens [2] à [5].

Depuis, des mesures et des calculs ont été faits sur les raies de rotation individuelles dans une bande de vibration-rotation [1], [6] à [12]. Les calculs ont montré qu'il fallait tenir compte de l'interaction vibration-rotation, même pour l'intensité totale des bandes de vibration : cette intensité fait en réalité intervenir, non pas $< v + n|M|v >^2$ mais $\sum_{J',J''} < v + n, J'|M|v, J'' >^2$, J' et J'' désignant les nombres quantiques de rotation. Dans ce qui suit, nous supposerons cette correction effectuée.

1-3-1. Choix des fonctions potentielles. — Le calcul de $< v + n|M|v >$ exige la connaissance des fonctions d'onde Ψ_{v+n} et Ψ_v, donc le choix d'une fonction potentielle. Dès le début deux types de fonction potentielle ont été utilisés :

— La fonction de Morse [1], [2], [3], [7], [9] [12], [13], [14], [15]

$$U(r) = d_e[1 - \exp(-a(r - r_e))]^2. \quad (3)$$

— La fonction de l'oscillateur harmonique perturbé, contenant des termes cubiques, quartiques..., qui rend bien compte des phénomènes près de la position d'équilibre de la molécule [1], [3], [5], [6], [7], [9], [10], [13], [14], [15]

$$U(r) = a_0(r - r_e)^2 + a_1(r - r_e)^3 + a_2(r - r_e)^4 + \dots \quad (4)$$

où r représente la distance internucléaire et r_e sa valeur à l'équilibre.

Un certain nombre d'autres fonctions potentielles, ont été proposées, qu'on trouvera récapitulées rapidement dans [1] et d'une manière exhaustive dans [16].

Il convient de rappeler que c'est en général pour obtenir une bonne vérification des *fréquences* expérimentales qu'on choisit l'une ou l'autre de ces fonctions potentielles. Les mesures *d'intensité* qui sont considérablement moins précises que les mesures de fréquence n'interviennent pratiquement pas dans ce choix.

L'utilisation de la fonction de Morse permet un calcul rigoureux d'expressions du type

$$\int \Psi'(q) . q^n . \Psi''(q) . dq.$$

Pour l'oscillateur anharmonique, le calcul de telles expressions se fait par les méthodes de perturbation. Ces méthodes ont été rendues plus systématiques par la méthode de transformation de contact, exposée dans [10] et exploitée dans [9] et [11].

1-3-2. Choix de la fonction $M(r)$. — La forme de la fonction $M(r)$ donnant le moment dipolaire en fonction de la distance internucléaire n'est connue qu'à partir des mesures d'intensité et de quelques considérations de chimie théorique [4], [17]. Ceci explique que la quasi-totalité des auteurs aient utilisé des développements limités de $M(r)$ au voisinage de r_e :

$$M = M_0 + M_1(r - r_e) + M_2(r - r_e)^2 + M_3(r - r_e)^3 \quad (5)$$

ou encore

$$M = d_0 + d_1 q + d_{11} q^2 + d_{111} q^3 + \dots \quad (6)$$

en désignant par q la coordonnée normale sans dimension correspondante

$$q = \left(\frac{\omega_e}{B_e}\right)^{1/2} . \frac{(r - r_e)}{r_e} \quad (7)$$

ω_e et B_e désignant les constantes spectroscopiques de la molécule.

Un tel développement limité ne se justifie que si les termes successifs vont en décroissant, c'est-à-dire en fait, pour de petites valeurs de $(r - r_e)/r_e$.

Nous montrerons plus loin par quelques exemples numériques que l'on ne peut pas plus négliger les termes M_2, M_3 ... qui définissent l'anharmonicité électrique qu'on ne peut négliger l'anharmonicité mécanique.

Récemment des auteurs [12], [15], [18] ont utilisé une nouvelle méthode de développement de $M(r)$: on suppose connus, à partir des mesures d'intensité, n éléments de matrice R^{v0}, c'est-à-dire

$$R^{v0} = < v|M(r)|0 >. \quad (8)$$

Dans ce cas, $M(r)$ sera approché par l'expression

$$\overline{M(r)} = \sum_{v=0}^{n} R^{v0} . \Psi_v(r)/\Psi_0(r). \quad (9)$$

Ce développement, rigoureux pour n infini, postule lorsqu'on l'arrête au $n^{\text{ième}}$ terme, que les coefficients R^{v0} suivants tendent rapidement vers zéro, ce qui semble justifié par l'expérience. Le choix d'une fonction potentielle correcte devient crucial par cette méthode.

1-3-3. Exemples de développement de moment dipolaire.

Cas de HCl.

Nous emprunterons les formules qui suivent et les valeurs numériques à Legay [1]. D'après ses mesures, les coefficients M_i de la formule (5) sont :

$M_0 = 1{,}138\ D$ $\quad M_1 = 0{,}993\ D/\text{Å}$

$M_2 = -0{,}309\ D/(\text{Å})^2$ $\quad M_3 = -1{,}093\ D/(\text{Å})^3$.

Les éléments de matrice R^{v0} du moment dipolaire (cf. formule (9)) s'expriment en fonction des M_i par

$$(R^{v0})^2 = \left[\sum_{i=1}^{n} \alpha^{-i/2} . R_i^{v0} . M_i\right]^2 \qquad (10)$$

ou α représente une constante de la molécule $\alpha = 4\Pi^2 c\mu\omega_e/h$ et où R_i^{v0} est l'élément de matrice $< v|q^i|0 >$, q étant la coordonnée sans dimension donnée par (8).

Ces éléments R_i^{v0} sont calculés dans [1] en utilisant les fonctions d'onde de l'oscillateur anharmonique.

Pour la bande fondamentale, (10) s'écrit :

$$(R^{10})^2 = \alpha^{-1}(R_1^{10} M_1 + \alpha^{-1/2} R_2^{10} M_2 + \alpha^{-1} R_3^{10} M_3)^2$$
$$= \alpha^{-1}(0,70750 - 0,010317 - 0,026667)^2. \qquad (11)$$

Dans cette expression, c'est le terme M_1 qui joue le rôle principal. Mais si, comme il est classique de le faire, on se contente de ce terme, on commet une erreur de 10 % sur l'intensité, ce qui est loin d'être négligeable.

Pour la bande première harmonique, (10) devient :

$$(R^{20})^2 = \alpha^{-1}(R_1^{20} M_1 + \alpha^{-1/2} R_2^{20} M_2 + \alpha^{-1} R_3^{10} M_3)^2$$
$$= \alpha^{-1}(- 0,04265 - 0,02188 + 0)^2. \qquad (12)$$

Le terme en M_1 et le terme en M_2 jouent donc un rôle comparable et ni l'un ni l'autre ne peuvent être négligés.

Pour la bande deuxième harmonique, on a :

$$(R^{30})^2 = \alpha^{-1}(R_1^{30} M_1 + \alpha^{-1/2} R_2^{30} M_2 + \alpha^{-1} R_3^{30} M_3)^2$$
$$= \alpha^{-1}(0,011817 + 0,0038775 - 0,010888)^2. \qquad (13)$$

Donc les trois termes jouent des rôles comparables.

Les considérations précédentes montrent qu'au moins dans le cas de HCl, il est nécessaire d'utiliser au moins 4 termes dans le développement de la formule (5) si on désire calculer les intensités de la deuxième harmonique, de la première, et même de la bande fondamentale.

Ces conclusions restent valables si on utilise la fonction potentielle de Morse au lieu de celle de l'oscillateur anharmonique, si on applique les formules de Dunham [3] ou de Crawford et Dinsmore [5], ou encore les valeurs expérimentales d'autres auteurs.

Cas de CO.

Nous emprunterons les formules qui suivent et les valeurs numériques à Herman et Shuler [14].

D'après leurs mesures, les valeurs les plus probables des coefficients de la formule (6), sont :

$$d_1 = 1,470 \times 10^{-1} \quad d_{11} = - 1,307 \times 10^{-3}$$
$$d_{111} = - 3,540 \times 10^{-4}.$$

Les éléments de matrice $R^{v'v''}$ du moment dipolaire s'expriment en fonction de ces coefficients par

$$(R^{v'v''})^2 = (d_1 R_1^{v'v''} + d_{11} R_2^{v'v''} + d_{111} R_3^{v'v''})^2 \qquad (14)$$

où $R_i^{v'v''}$ est l'élément de matrice $< v'|q_i|v'' >$.

Nous avons recalculé un certain nombre de ces $R_i^{v'v''}$ et nous obtenons les résultats suivants :

Pour la bande fondamentale, (14) devient :

$$(R^{10})^2 = (0,10430 - 0,00025 - 0,00075)^2.$$

Le terme en d_1 est de loin le plus important. Négliger d_{11} et d_{111} revient à commettre sur $(R^{10})^2$ une erreur de 0,2 %, ce qui est négligeable.

Pour la bande première harmonique, (14) donne :

$$(R^{20})^2 = (- 5,203 \times 10^{-3} - 0,911 \times 10^{-3} + 0)^2.$$

Le terme en d_1 est plus important, mais négliger le terme d_{11} reviendrait à commettre une erreur de 25 % sur l'intensité.

Pour la bande deuxième harmonique (14) devient :

$$(R^{30})^2 = (5,664 \times 10^{-4} + 1,167 \times 10^{-4} - 3,066 \times 10^{-4})^2.$$

Les trois termes sont du même ordre de grandeur.

Les conclusions sont presque les mêmes que pour HCl : le calcul de l'intensité de la bande première harmonique exige l'utilisation de d_1 et de d_{11}, celui de la bande deuxième harmonique l'utilisation de d_1, d_{11}, d_{111}.

Nous n'avons pas trouvé de travaux concernant d'autres molécules diatomiques que HCl et CO, et qui permettent les mêmes discussions sur l'importance relative des termes du moment dipolaire.

1-4. Cas des molécules polyatomiques. — La résolution du problème des intensités des molécules polyatomiques est bien plus difficile et bien moins avancée que celle des molécules diatomiques. Les mesures d'intensité ne sont guère plus difficiles et, au moins pour des molécules simples, un bon nombre de résultats ont été publiés : tout au plus peut-on signaler que la plupart des mesures concernent les intensités intégrées sur toute une bande de vibration et non, comme cela se fait de plus en plus pour les molécules diatomiques, les intensités des raies individuelles de rotation.

La partie la plus difficile est l'interprétation de ces mesures en termes de moment dipolaire et de fonction potentielle. En effet, pour une molécule à n atomes, il y a $3n - 6$ (ou $3n - 5$ pour une molécule linéaire) coordonnées normales q_i. Ceci veut dire que le développement du moment dipolaire, qui a cette fois 3 composantes, comprend, *a priori*, 3 termes constants, $3(3n - 6)$ termes du premier degré par rapport aux q_i, $3(3n - 6)(3n - 5)/2$ termes du deuxième degré, au lieu de 3 termes en tout pour les molécules diatomiques.

De même si la fonction potentielle est celle d'un oscillateur anharmonique, il y a $(3n - 6)$ termes

du deuxième degré, $(3n-6)(3n-5)(3n-4)/6$ termes du troisième degré...

Cette complexité explique qu'on puisse classer les calculs théoriques sur les intensités de molécules polyatomiques en deux types : 1° ceux où on se préoccupe d'interpréter les résultats de manière simple et quasi-intuitive, de manière à ce que le nombre de paramètres inconnus à déterminer soit inférieur ou égal au nombre de mesures effectuées ; 2° ceux où la rigueur théorique est grande mais qui, pour l'instant, sont invérifiables faute de données expérimentales.

1-4-1. Premier type de calculs. — Ils utilisent un certain nombre d'hypothèses, de validité souvent discutable :

Hypothèse 1 : L'intensité d'une bande fondamentale ν_i est proportionnelle au carré de la dérivée première de M par rapport à la coordonnée normale q_i correspondante

$$I_{\nu_i} \sim \left(\frac{\partial \vec{M}}{\partial q_i}\right)^2. \tag{15}$$

Cette hypothèse sous-entend l'harmonicité électrique et mécanique. Mais, nous avons vu dans l'exemple de HCl et de CO, qu'elle approche d'assez près la réalité, même si ces deux harmonicités ne sont pas réalisées. Une telle hypothèse ne peut être faite pour des bandes harmoniques.

Dans ces conditions, $\left|\frac{\partial \vec{M}}{\partial q_i}\right|$ est déterminé par les mesures d'intensité. Si une composante seulement de $\vec{M}$, M_x par exemple intervient, on a alors $\partial M_x/\partial q_i$ au signe près :

$$\left|\frac{\partial \vec{M}}{\partial q_i}\right| = \left|\frac{\partial M_x}{\partial q_i}\right| = \pm \frac{\partial M_x}{\partial q_i}. \tag{16}$$

Hypothèse 2 : La fonction potentielle est harmonique.

Compte tenu de cette hypothèse et des fréquences des bandes observées dans le spectre infrarouge de la molécule, on peut exprimer numériquement la fonction potentielle en fonction des coordonnées de déplacement : allongements Δr des liaisons, variations $\Delta\alpha$ des angles de valence, etc... Il est alors possible de trouver les relations qui relient les coordonnées normales q_i aux coordonnées symétriques S_t (1)

$$S_t = \sum_i L_{ti}\, q_i \quad \text{ou} \quad q_i = \sum_t (L^{-1})_{it}\, S_t. \tag{17}$$

Les coordonnées symétriques peuvent elles-mêmes être exprimées uniquement à partir de considérations géométriques (1) en fonction des coordonnées internes ξ_l

$$S_t = \sum u_{tl}\, \xi_l \quad \text{ou} \quad \xi_l = \sum_t (u^{-1})_{lt}\, S_t. \tag{18}$$

Les relations (3) permettent de déterminer les quantités $\partial M_x/\partial S_t$ car :

$$\frac{\partial M_x}{\partial S_t} = \sum_i \frac{\partial M_x}{\partial q_i}\cdot\frac{\partial q_i}{\partial S_t} = \sum_i (L^{-1})_{it}\cdot\frac{\partial M_x}{\partial q_i}. \tag{19}$$

Il peut y avoir une incertitude sur les signes des $\partial M_x/\partial q_i$ ce qui entraîne plusieurs valeurs possibles pour $\partial M_x/\partial S_t$

Ensuite les relations (18) donnent les dérivées par rapport aux coordonnées internes

$$\frac{\partial M_x}{\partial \xi_l} = \sum_t u_{tl}\frac{\partial M_x}{\partial S_t}. \tag{20}$$

Hypothèse 3 : Additivité des moments de liaison.

Cette hypothèse a été introduite par Mecke [19], [20]. Le moment dipolaire $\vec{M}$ de la molécule est la somme de moments dipolaires partiels attribués à chaque liaison et ayant la direction de la liaison correspondante.

Soit $\mu_1\, \mu_2 \ldots \mu_k$ ces moments de liaison.

Il existe des relations faciles à trouver entre les composantes M_α de $\vec{M}$ et les moments de liaison μ_k. Soit :

$$M_\alpha = \sum_k \Phi_{\alpha k}\cdot\mu_k. \tag{21}$$

Les $\Phi_{\alpha k}$ sont les cosinus des angles des liaisons avec les axes Ox, Oy, Oz.

D'où

$$\frac{\partial M_\alpha}{\partial \xi_l} = \sum_k \left(\frac{\partial \Phi_{\alpha k}}{\partial \xi_l}\cdot\mu_k + \Phi_{\alpha k}\cdot\frac{\partial \mu_k}{\partial \xi_l}\right). \tag{22}$$

Les dérivées $\partial\Phi_{\alpha k}/\partial\xi_l$ sont calculables à partir de considérations géométriques. Les dérivées $\partial M_\alpha/\partial\xi_l$ sont données par les équations (19) et (20). Il en résulte qu'on peut, à partir de (22) calculer les moments de liaison μ_k et les dérivées $\partial\mu_k/\partial\xi_l$ de ces moments de liaison (2) par rapport aux coordonnées internes de la molécule.

Cette méthode est très couramment utilisée [21] à [32] mais sa validité a été mise en doute [33], [34] parce qu'elle amène à des résultats inexplicables. D'une part, les diverses vibrations de type de symétrie différents, donnent des valeurs très différentes pour la charge effective d'une même liaison [23], [26]. D'autre part, les moments de liaison μ_k déduits des mesures de bandes de déformation ont des valeurs différant nettement de celles que donnent d'autres méthodes.

(1) Cf. Wilson [43], p. 115.

(2) Lorsque la coordonnée interne ξ_l est l'allongement Δr_k de la liaison dont le moment est μ_k, la quantité $\partial\mu_k/\partial\xi_l$ est souvent appelée « charge effective » de la liaison.

C'est pourquoi Sverdlov [34] à [39] a jugé utile de modifier quelque peu les approximations utilisées sans pour cela rejeter les trois hypothèses précitées.

1-4-2. Deuxième type de calculs. — Un deuxième groupe d'auteurs rejette les trois hypothèses précédentes et considère le moment dipolaire global $\vec{M}$ comme une fonction des coordonnées normales dont les seules propriétés connues sont celles que donne la théorie des groupes. Par commodité, on considère ses composantes M_α comme développables en polynômes par rapport aux coordonnées normales.

Ensuite le calcul des éléments de matrice du type $< v'|M_\alpha|v'' >$ se ramène à des calculs de terme du type $< v''|(q_i)^n|v'' >$, c'est-à-dire à des problèmes de détermination de fonctions d'onde.

Ce genre de calculs a été fait par la méthode « classique » des perturbations par Eggers et Crawford pour CO_2 et N_2O [33]. Par la suite, la méthode de la transformation de contact a été appliquée aux calculs d'intensité des molécules di- et polyatomiques [10] puis au cas général des molécules polyatomiques [40], des molécules linéaires [40], [41], des toupies symétriques [42].

Ces méthodes permettent d'obtenir des relations entre les constantes d'anharmonicité du potentiel et les coefficients du moment dipolaire, mais les applications directement pratiques sont quasi-inexistantes. Un des écueils est que, contrairement à ce qui se passe pour les molécules diatomiques, on manque des données suffisantes pour connaître avec beaucoup de précision les fonctions potentielles, du moins dans leur partie anharmonique.

Le but du présent article est d'éclaircir un peu le problème en montrant le rôle que jouent les coefficients du développement du moment dipolaire dans les calculs d'intensité et, en utilisant la théorie des groupes, de trouver des relations importantes entre ces coefficients.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Legay (F.), *Thèse*, Paris, 1957.
[2] Dunham (J. L.), *Phys. Rev.*, 1929, **34**, 438.
[4] Dunham (J. L.), *Phys. Rev.*, 1930, **35**, 1347.
[4] Mulliken (R. S.), *J. Chem. Physics*, 1934, **2**, 400 et 712.
[5] Crawford (B. L.) et Dinsmore (H. L.), *J. Chem. Physics*, 1950, **18**, 983 et 1682.
[6] Herman (R.) et Wallis (R. F.), *J. Chem. Physics*, 1955, **23**, 637.
[7] Herman (R.) et Rubin (R. J.), *Astrophys. J.*, 1955, **121**, 533.
[8] Legay (F.), *Cahiers Physique*, 1956, **75**, 11.
[9] Herman (R.) et Rubin (R. J.), *Canad. J. Physics*, 1956, **34**, 1119.
[10] Hanson (H.), Nielsen (H. H.), Shaffer (W. H.) et Waggoner (J.), *J. Chem. Physics*, 1957, **27**, 40.
[11] Legay (F.), *Cahiers Physique*, 1958, **99**, 416.
[12] Herman (R.) et Rubin (R. J.), *J. Chem. Physics*, 1960, **32**, 1393.
[13] Herman (R.) et Shuler (K. E.), *J. Chem Physics*, 1953, **21**, 373.
[14] Herman (R.) et Shuler (K. E.), *J. Chem. Physics*, 1954, **22**, 481.
[15] Trischka (J.) et Salwen (H.), *J. Chem. Physics*, 1959, **31**, 218.
[16] Varshni (Y. P.), *Rev. Mod. Physics*, 1957, **29**, 664.
[17] Gray (B. F.) et Pritchard (H. O.), *J. Mol. Spect.*, 1958, **2**, 137.
[18] Blinder (S. M.), *J. Chem. Physics*, 1960, **32**, 582.
[19] Timm (B.) et Mecke (R.), *Z. Physik*, 1935, **98**, 373.
[20] Mecke (R.), *Z. Physik*, 1937, **107**, 595.
[21] Schatz (P. N.) et Hornig (D. F.), *J. Chem. Physics*, 1953, **21**, 1516.
[22] Williams (D. G.), Person (W. B.) et Crawford (B.), *J. Chem. Physics*, 1955, **23**, 179.
[23] MacKean (D. C.) et Schatz (P. N.), *J. Chem. Physics*, 1956, **24**, 317.
[24] MacKean (D. C.), *J. Chem. Physics*, 1956, **24**, 1002.
[25] Golike (R. C.), Mills (I. M.), Person (W. B.) et Crawford (B.), *J. Chem. Physics*, 1957, **26**, 1266.
[26] Mayhood (J. E.), *Canad. J. Phys.*, 1957, **35**, 954.
[27] Nyquist (I. N.), Mills (I. M.) et Person (W. B.), *J. Chem. Physics*, 1957, **26**, 552.
[28] Dickson (A. D.), Mills (I. M.) et Crawford (B.), *J. Chem. Physics*, 1957, **27**, 445.
[29] Schultz (J. W.) et Eggers (D. F.), *J. Mol. Spect.*, 1958, **2**, 113.
[30] Mills (I. M.), Person (W. B.), Scherer (J. R.) et Crawford (B.), *J. Chem. Physics*, 1958, **28**, 851.
[31] Schatz (P. N.) et Levin (I. W.), *J. Chem. Physics*, 1958, **29**, 475.
[32] Eaton (D. R.) et Thompson (H. W.), *Proc. Roy. Soc.*, A, 1959, **251**, 475 et 458.
[33] Eggers (D. F.) et Crawford (B.), *J. Chem. Physics*, 1951, **19**, 1554.
[34] Sverdlov (L. M.), *Opt. i. Spekt.*, 1959, **7**, 600.
[35] Sverdlov (L. M.), *Opt. i. Spekt.*, 1958, **4**, 697.
[36] Sverdlov (L. M.), *Opt. i. Spekt.*, 1959, **6**, 729.
[37] Sverdlov (L. M.), *Opt. i. Spekt.*, 1959, **7**, 21.
[38] Sverdlov (L. M.), *Opt. i. Spekt.*, 1959, **7**, 152.
[39] Sverdlov (L. M.), *Opt. i Spekt.*, 1960, **8**, 96.
[40] Legay (F.), *Cahiers Physique*, 1958, **99**, 416.
[41] Waggoner (J.) et Shaffer (W. H.), *J. Mol. Spect.*, 1960, **4**, 224.
[42] Hanson (H. M.) et Nielsen (H. H.), *J. Mol. Spect.*, 1950, **4**, 468.
[43] Wilson (E. B.), Decius (J. C.) et Cross (P. C.), Molecular Vibrations, McGraw-Hill Book Company, New York, 1955.

FLUORESCENCE, PHOSPHORESCENCE ET « RÉDUCTION » D'UN ÉCHANTILLON DE WILLEMITE ACTIVÉ AU MANGANÈSE

Par HECTOR A. ARDUINO, JUAN C. GUEBCI, ANDREA LEVIALDI et NORBERTO MAJLIS,
Departemento de Fisica, Facultat de Ciencias Exactas y Naturales, Buenos-Aires, Argentine.

Résumé. — L'utilisation d'un phosphoroscope à oscilloscope nous a permis de photographier les courbes d'excitation et d'extinction d'un échantillon de willemite Zn_2SiO_4 (Mn 1 %) entre 15 °C et 200 °C.

Sur les clichés agrandis, nous avons mesuré la somme de lumière et nous l'avons comparée à la lumière totale émise à l'extinction. L'analyse des courbes nous a permis de définir deux vies moyennes fluorescentes et une phosphorescente. Nous avons déterminé la « réduction » (variation relative du rendement) qui traduit une variation dans le transfert d'énergie interne avec la température. Cette note n'est qu'une introduction à la mesure du rendement absolu au moyen d'un radiomètre différentiel absolu qui va être mis au point chez nous.

Abstract. — The use of an oscillograph phosphoroscope gave us the possibility of photographing the excitation and decay curves between 15 °C and 200 °C of a willemite sample Zn_2SiO_4 (Mn 1 %).

By means of an enlarged negative, we measured the sum of light and compared it with the total extinction light. The analysis of these curves allowed us to define two different fluorescent life-times and one phosphorescent one. We measured the so-called "reduction" (relative variation of efficiency) which corresponds to a variation with temperature of the internal energy transfer. This paper is an introduction to a research on the measurement of the absolute efficiency by means of an absolute differential radiometer.

Introduction. — Nous avons observé une différence entre la loi suivie par la courbe d'émission sous excitation et la courbe d'extinction. Cette différence dépend beaucoup de la température dans le domaine observé (entre 15 et 200 °C). En outre, le rendement lumineux, comme on le sait, dépend de la température.

Un travail qui a déjà fait l'objet d'une publication antérieure [1] a été poursuivi dans le but de mesurer la variation de la « réduction » (quenching) en fonction de T. Comme on le sait, toute émission lumineuse où les centres excités ne sont pas soumis à interaction avec d'autres atomes pendant le temps qui sépare l'absorption de l'émission, donne une courbe d'émission, sous excitation, égale à la courbe complémentaire de la courbe d'extinction lorsque les centres excités sont un faible pourcentage de tous les centres présents (1). Ceci est en particulier certain pour des courbes exponentielles.

Dans ces conditions, le rendement sous excitation et le rendement à l'extinction sont complémentaires ; le phosphore restituant pendant l'extinction toute l'énergie lumineuse emmagasinée pendant l'excitation.

Nous disons que la surface A' est complémentaire de B quand $A = A'$ (*fig.* 1).

Nous appelons rendement pour une longueur d'onde d'émission λ_{em} excitée par une longueur d'excitation λ_{ex}, le rapport entre le nombre de photons émis et le nombre de photons d'excitation absorbés.

Si, de plus, la courbe d'émission sous excitation est exponentielle avec une vie moyenne τ_{em} et si la vie moyenne à l'extinction est τ_{ex}, il arrive que :

$$\tau_{em} = \tau_{ex}.$$

Nous admettons, en plus, en accord avec presque tous les auteurs, que même lorsqu'il y a des interactions, qui enlèvent toute symétrie entre courbe d'excitation et courbe d'émission, le coefficient d'absorption du phosphore à la radiation excitatrice n'est pas modifié par la température. Dans ces conditions, toute dissymétrie doit être attribuée exclusivement à l'interaction qui modifie le transfert interne d'énergie. Il en résulte une variation du rendement. C'est cette variation relative de rendement que nous appellerons ci-dessous « réduction ».

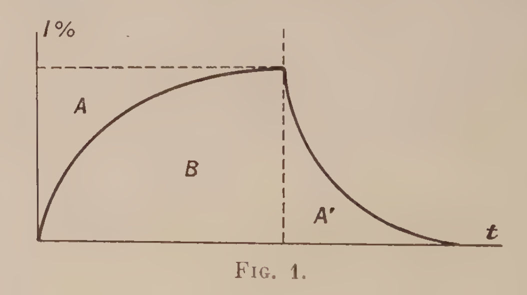


FIG. 1.

Nous pouvons définir une « *réduction instantanée* », une « réduction totale », une « courbe de

(1) Loin de la saturation.

réduction » en fonction du temps et une « courbe de réduction » en fonction de la température. Les définitions en seront les suivantes :

Réduction instantanée : Rapport entre ordonnées à l'instant considéré ; soit rapport entre ordonnée de la courbe d'extinction et ordonnée de la courbe complémentaire de la courbe d'excitation choisies pour des temps égaux, en prenant pour origine le début des deux processus différents.

Réduction totale : Rapport entre la surface totale limitée par la courbe d'extinction et la surface limitée par la courbe complémentaire à celle d'émission.

Courbe de réduction en fonction du temps : Définie par les ordonnées qui donnent les rapports entre surfaces partielles successives limitées par les courbes d'extinction et la complémentaire de la courbe d'émission entre $t_0 = 0$ et t variable.

Courbe de réduction en fonction de la température : Réduction totale en fonction de la température. Si l'excitation est assez intense pour amener le phosphore très près de la saturation, une variation moindre de l'excitation peut produire une grande variation de la courbe d'excitation sans presque changer la courbe d'extinction.

Dans nos expériences, nous sommes certainement très loin de la saturation. En effet, bien que nous ne connaissions pas encore le rendement absolu, nous pouvons admettre que la radiation excitatrice (λ = 2 537 Å) a une intensité constante et son absorption par le phosphore ne varie pas entre 15 et 200 °C.

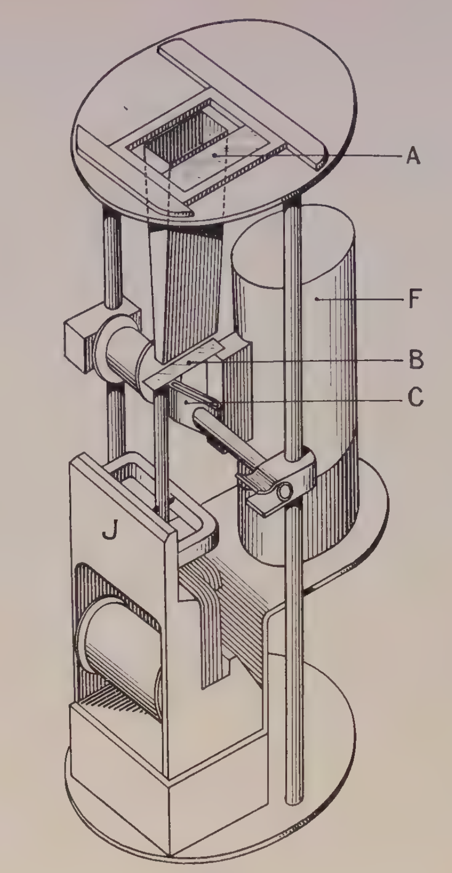


Fig. 2.

Phosphoroscope utilisé. — Dans les figures 2 et 2 *bis* on montre le dispositif utilisé, légèrement modifié par rapport au schéma donné précédemment [1].

A : Lamelle qui permet de supprimer les radiations ultraviolettes en laissant seulement le visible.

B : Lamelle déplaçable qui permet de couper toute la radiation (y compris l'ultraviolet). On l'utilise pour obtenir une onde d'excitation carrée.

C : Porte échantillon de métal pour y loger le phosphore.

D : Système de chauffage électrique à résistance (en courant continu).

E : Thermopile.

F : Photomultiplicateur IP 21 R. C. A.

G : Tube germicide (germicide tube) servant de source d'ultraviolets 8 watts Sylvania (en courant continu).

H : Transformateur pour allumer le tube par impulsions de courant alternatif.

I : Oscilloscope Tektronix No. 545.

J : Relais Siemens 3402/5 modifié.

K-L : Commutateur mécanique actionné par un moteur synchrone.

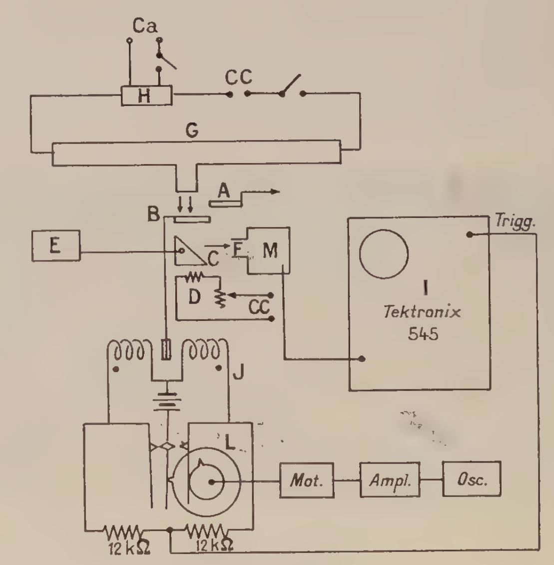


Fig. 2 *bis*.

Le fonctionnement du dispositif expérimental est le suivant : Le faisceau ultraviolet est arrêté périodiquement par la lamelle transparente au visible (B). La lamelle B est actionnée par le relais (J) qui est commandé par le commutateur K-L qui, à son tour est actionné par le moteur synchrone. Le

faisceau ultraviolet dont la largeur est égale à celle de la cuvette porte-échantillon, soit 3 mm, est intercepté en un temps t à vitesse constante.

Dans une série d'observations le temps d'excitation utilisé était : $t_1 = 1{,}125$ seconde et le temps d'extinction : $t_2 = 3{,}375$ secondes, donc t_1 et t_2 très grands par rapport au temps de coupure ($t = 0{,}002$ seconde). La lamelle B est presque parfaitement transparente au visible de façon que nous puissions obtenir une impulsion ultraviolette carrée superposée à une irradiation continue.

Le faisceau, ainsi modulé, tombe sur l'échantillon de phosphore dont l'émission excite le phototube F. M. IP 21 R. C. A.

L'impulsion électrique créée dans le photomultiplicateur est appliquée au préamplificateur du Tektronix et simultanément déclenche le « trigger » au moyen d'un commutateur (J-L). Le déclenchement s'effectue 0,01 seconde avant que le faisceau ne soit coupé. Le chauffage de l'échantillon se fait par une résistance alimentée en courant continu pour éliminer tout bruit de fond ; sa température est mesurée par une thermopile. La lamelle semi-transparente qui intercepte l'ultraviolet (A) ; est disposée de telle sorte que l'on obtienne une impulsion carrée visible servant de repère quand (B) fonctionne comme précédemment.

Afin de permettre l'observation du phénomène pendant un temps plus prolongé, nous avons appliqué un balayage exponentiel à l'axe des X ; de cette façon, les modifications en ordonnées deviennent plus évidentes. Les temps ont été mesurés en superposant des impulsions électriques séparées par des intervalles de temps fixes.

Résultats. — Les résultats de nos expériences sont représentés sur les divers diagrammes ci-joints.

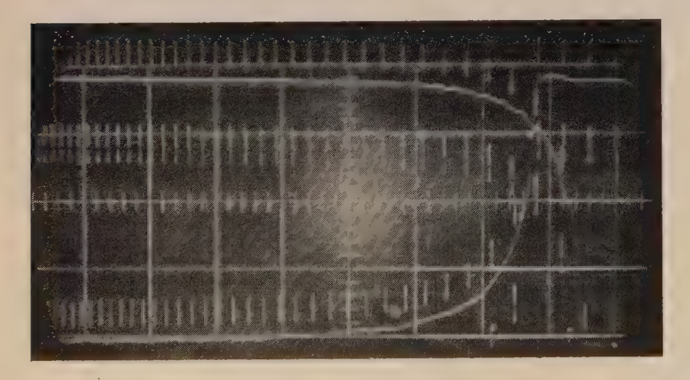


Fig. 3*a*. — 20 °C.

Nous avons d'abord déterminé la variation de l'émission sous excitation et de l'extinction en fonction du temps (paramètre : la température). Les photographies de la figure 3 en donnent 2 exemples, respectivement à 20 et à 100 degrés. Nous en avons déduit les courbes normalisées en échelle semi-logarithmique représentées par les dia-

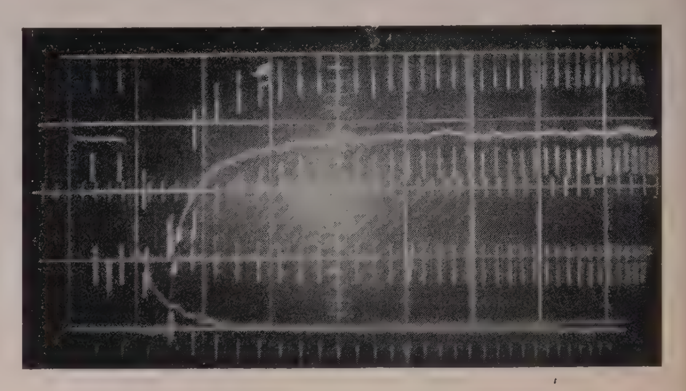


Fig. 3*b*. — 100 °C.

grammes des figures [4_1, 4_2, 4_3, 4_4, et 4_5], qui représentent à diverses températures comprises entre 25 et 200 °C, la variation de l'intensité pour

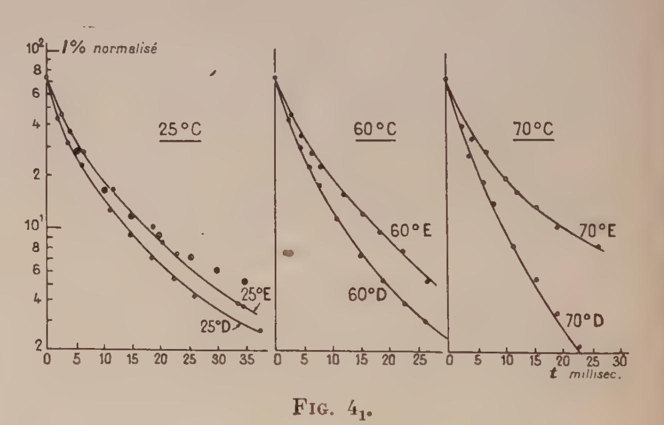


Fig. 4_1.

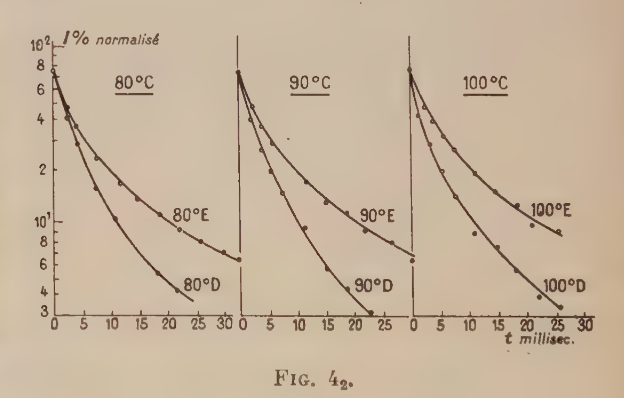


Fig. 4_2.

cent normalisé de la décroissance (extinction sans excitation) : courbe D, et de l'excitation : courbe E.

L'intensité de l'émission sous excitation et celle de l'extinction en fonction de la température (paramètre : le temps) sont représentées par le dia-

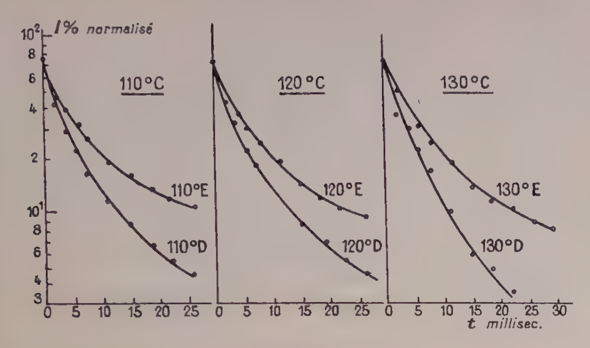


FIG. 4_3.

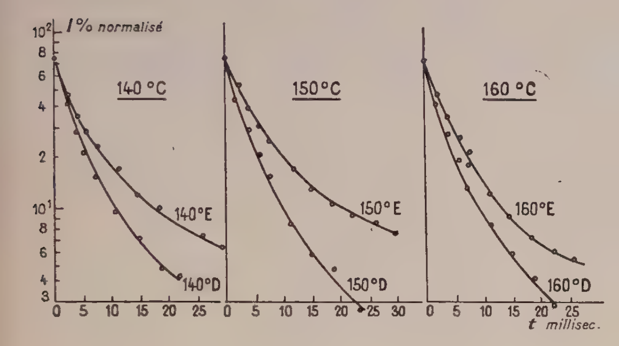


FIG. 4_4.

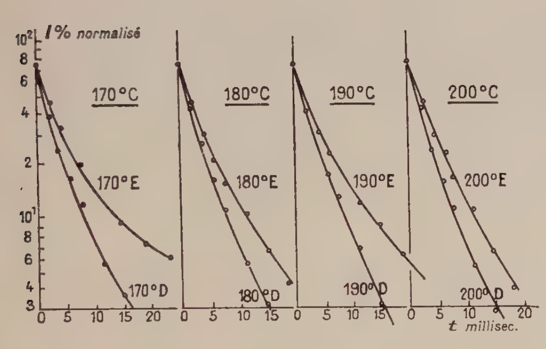


FIG. 4_5.

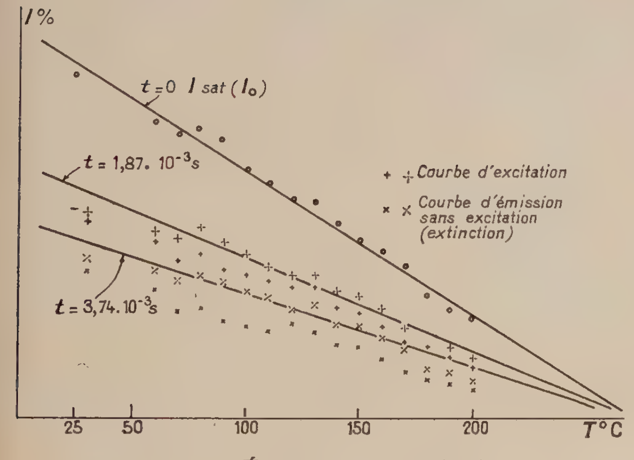


FIG. 5. — Émission sous excitation en fonction de la température (paramètre : le temps).

gramme de la figure 5 pour $t = 0$ (intensité de saturation), $t = 1{,}87.10^{-3}$ s, $t = 3{,}74.10^{-3}$ s.

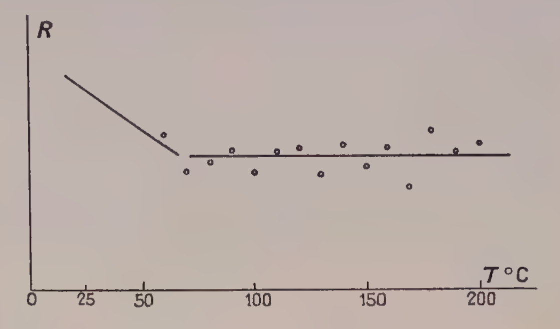


FIG. 6. — Réduction en fonction de la température.

La figure 6 donne la « réduction » en fonction de la température en prenant comme paramètre le temps.

La figure 7 donne la « réduction » en fonction du

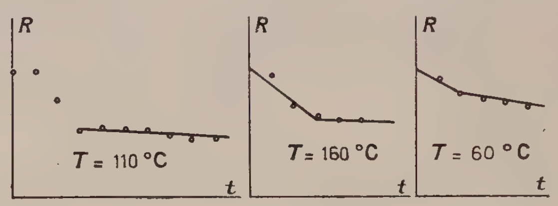


FIG. 7. — Réduction en fonction du temps.

temps en prenant comme paramètre la température.

L'intensité d'émission sous excitation (courbe supérieure) et d'extinction (courbe inférieure) en fonction du temps est rapportée à l'équation :

$$x = A(1 - e^{-\gamma t}).$$

Le problème est un cas compliqué de transfert d'énergie interne. Nous n'avons pu étudier jusqu'ici que la variation relative du rendement. Nous mettons actuellement au point un radiomètre absolu pour parfaire ces études.

Néanmoins nous pouvons dès maintenant tirer quelques conclusions.

L'intensité de saturation relative varie linéairement avec la température (*fig.* 4) ce qui prouve que les centres d'émission sont réduits linéairement. En effet, on connaît bien la relation linéaire entre émission et excitation à température constante et loin de la saturation.

La réduction en fonction du temps suit entre 60 et 200 °C la loi suivante :

1° Pendant un temps inférieur à 10 millisecondes la variation (de réduction) est linéaire et rapide et ensuite presque constante (variation linéaire très lente).

2° La réduction en fonction de la température suit une loi très semblable. Si la température avait

été modifiée linéairement avec le temps, avec un gradient particulier, la courbe de réduction thermique et celle de réduction avec le temps pourrait se comparer. Cette comparaison nous paraît être assez proche de celle entre « thermal glow » et « after-glow ».

3° Toutes les courbes normalisées d'extinction et d'excitation montrent que leur décalage dépend beaucoup de la température.

Il y a deux cycles en évidence : un cycle rapide et un cycle lent. La réduction avec le temps varie beaucoup plus pendant le cycle rapide que pendant le cycle lent.

Nous avons ensuite appliqué la méthode de décomposition en exponentielles [2] à nos courbes, en considérant toujours des temps totaux tels que l'émission finale observée soit inférieure à 1 % à la valeur initiale. Nous avons ainsi obtenu :

1) Deux émissions fluorescentes de vie moyenne : $\tau_1 = 2{,}1 \pm 0.2 \times 10^{-3}$ s et $\tau_2 = 5\ 5 \pm 0{,}3 \times 10^{-3}$ s indépendantes de la température.

2) Une émission phosphorescente due à une famille de pièges autour de la valeur :

$$E = 0{,}41 \pm 0{,}02 \text{ eV} \qquad (S = 10^8 \, s^{-1}).$$

Manuscrit reçu le 15 octobre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Arduino (H. A.), Guerci (J. C.) et Levialdi (A.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1960, **250**, 831-833.

[2] Saddy (J.), *J. Physique Rad.*, 1959, **20**, 890.

REVUE DES LIVRES

Brunet (M.), **Écoulement des liquides visqueux dans des canaux resserrés, ses lois, ses applications,** Un vol. broché de 80 p. (18 × 27 cm). Publications scientifiques et techniques du Ministère de l'Air, Paris, 1958, prix 11 NF.

I. Origine de l'étude. II. Équations du mouvement laminaire. III. Répartition des températures en régime permanents. V. Évolution du débit. VI. Glissement visqueux. VII. Liquide non newtonien. IX. Essais sur une huile méthylsilicone. X. Effet Charron. XI. Application aux amortisseurs.

J. Winter.

Escande (L.), **Nouveaux compléments d'hydraulique (3e partie).** Un livre de 191 p., broché (18 × 27 cm), Publications scientifiques et techniques du Ministère de l'Air, Paris, 1958, prix : 27,90 NF.

Divers problèmes d'écoulements, oscillations, étranglements, régimes variables, etc... des photographies, hors textes, et 60 figures avec tables et résultats expérimentaux.

J. Winter.

Crawford (A. E.), **Technique des ultra-sons,** traduit par J. Palmé. (1 vol. 13,5 × 21,5 cm, 456 pages, Dunod, Paris, 1959, prix : 48 NF.)

Les ultra-sons ont rapidement quitté le domaine du laboratoire pour faire l'objet de nombreuses applications industrielles. Aussi l'ouvrage de B. Crawford groupant toutes ces applications est-il particulièrement intéressant.

Cet ouvrage comprend trois grandes parties :

Un rappel descriptif sur la propagation des ondes ultrasonores et le phénomène de cavitation, ces deux points étant à la base de la majorité des applications. Ce rappel a été précisé de manière plus théorique par J. Palmé qui cite dans ce même chapitre les formules principales régissant les ondes ultra-sonores.

— Un chapitre sur les émetteurs : phénomène de piézoélectricité, magnétostriction, générateurs à veines fluides.

— Un chapitre d'applications qui constitue la partie principale de l'ouvrage (applications métallurgiques, chimiques, biologiques). Cette partie de l'ouvrage est autrement riche et parfaitement documentée. On regrettera cependant qu'un effort de synthèse sur le rôle des ultra-sons pour un phénomène physique donné n'ait pas été suffisamment fait. Les paragraphes supplémentaires introduits par J. Palmé sont précieux à cet égard car ils résument et concluent.

Ch. Moretti.

Synge (J. L.), **The relativistic gas.** (1 vol. 16 × 22,5 cm, 120 p., 15 fig., North-Holland publishing company, Amsterdam, 1957, prix : 15 fl.).

Cet ouvrage fait suite à « Relativity ; the special Theory » du même auteur, et en utilise les notations (en particulier le formalisme à quatre dimensions de Minkowsky) et les résultats.

On y étudie un gaz relativiste composé de particules (ou éventuellement de photons) sans dimension interagissant uniquement par collision directe, les phénomènes relevant de la théorie générale de la relativité ou de la mécanique quantique n'étant pas pris en considération. On suppose que les photons sont des particules d'énergie $\hbar\nu$, de moment $\hbar\nu/c$ dont le quadri-vecteur d'énergie-impulsion se trouve sur le cône de lumière et obéissant aux lois de la statistique de Maxwell-Boltzmann.

Après quelques considérations géométriques sur l'espace des quadri-vecteurs d'énergie-impulsion d'une particule de masse m (ou d'un photon), l'auteur définit une fonction de distribution invariante et un tenseur d'énergie-impulsion du gaz.

Puis par des considérations statistiques, il montre qu'en l'absence de forces extérieures la distribution la plus probable est celle de Maxwell-Jüttner. Il en déduit les équations du mouvement du gaz considéré, la distribution d'énergie, définit sa température, et la vitesse la plus probable d'une particule du gaz.

Après en avoir tiré quelques conséquences simples, l'auteur consacre son dernier chapitre à l'étude des ondes de choc dans les gaz relativistes et, en appendice, discute certaines formules sur les champs de rayonnement dans les gaz dues à L. H. Thomas (1930).

Bien que n'abordant qu'un petit nombre de questions, cet ouvrage, d'une clarté remarquable, sera utile à celui qui désire étudier le comportement du gaz relativiste.

A. Mangeney.

ÉLARGISSEMENT D'UNE RAIE PAR UN SÉLECTEUR D'AMPLITUDE

Par P. MOATTI,

Résumé. — On étudie l'élargissement d'un spectre d'énergie par sommation dans les canaux d'un sélecteur d'amplitude.

On précise le cas de la déformation d'une courbe de Gauss lorsqu'on la construit par paliers rectangulaires. On donne les caractéristiques de la courbe de Gauss d'origine à partir de la courbe expérimentale.

Application à l'étude des fluctuations de gain d'un photomultiplicateur.

Abstıact. — The author studies the broadening of an energy spectrum by summation in the channels of an amplitude selector.

The author emphasizes the case of the deformation of a Gaussian curve when it is built with rectangular steps. He gives characteristics of the original Gaussian curve from the experimental one.

Application to study of gain fluctuations of a photomultiplier.

I. Position du problème. — Si l'on considère un spectre d'énergie, les impulsions d'une raie de forme quelconque, à leur entrée dans un sélecteur d'amplitude, ont une distribution en hauteur qui est définie par la densité de probabilité :

$$\boxed{f(v) = \frac{1}{n_0} \cdot \frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}v}},$$

où n_0 est le nombre total d'impulsions par seconde relative à la raie, et v leur hauteur. L'histogramme

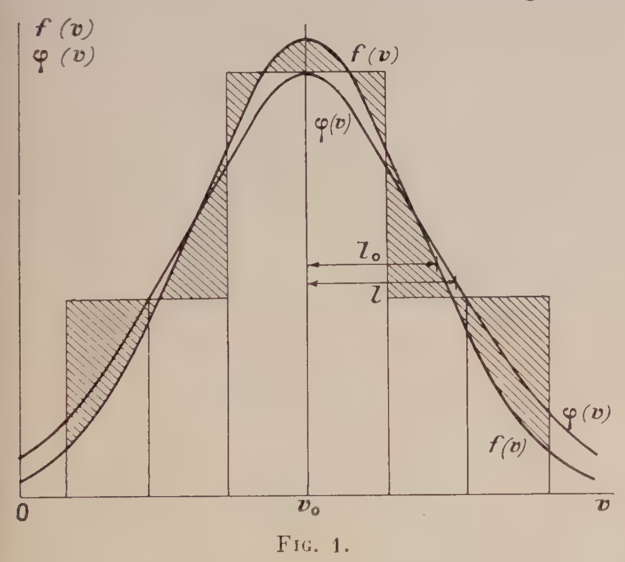


FIG. 1.

expérimental fourni par le sélecteur représente le nombre de coups par seconde :

$$\boxed{\Delta n(v, s) = n_0[F(v + s) - F(v - s)]} \qquad (1)$$

$F(v) = \int_0^v f(v)\, \mathrm{d}v$ est la fonction de répartition en hauteur des impulsions ; $2s$ est la largeur d'un canal du sélecteur.

La densité de probabilité expérimentale à la sortie du sélecteur devient donc :

$$\varphi(v, s) = \frac{1}{n_0} \cdot \frac{\Delta n}{2s} = \frac{1}{2s} [F(v + s) - F(v - s)]$$

au lieu de $f(v)$. *C'est l'effet d'intégration dans un canal par sélection d'amplitude*, que nous nous proposons d'étudier ici (voir *fig.* 1).

II. Élargissement d'une raie dans le cas général. — 1° CALCUL DE LA FONCTION DE RÉPARTITION VRAIE A L'ENTRÉE DU SÉLECTEUR. — Supposons les canaux juxtaposés ; on a, en sommant :

$$\sum_1^q \Delta n_i = n_0\, F(v_q) \quad \text{et} \quad \sum_1^\infty \Delta n_i = n_0.$$

Par suite :

$$\boxed{F(v_q) = \frac{\sum_1^q \Delta n_i}{\sum_1^\infty \Delta n_i}}. \qquad (2)$$

Il est donc toujours possible de connaître exactement la fonction de répartition à l'entrée du sélecteur.

Pour avoir la densité vraie $f(v)$, il faudrait différentier la courbe de discrimination, sans oublier le décalage des abscisses, le milieu du q^{eme} canal ayant pour abscisse $v_q - s$ et non pas v_q.

2° EFFETS D'EMPILEMENT ET DE TEMPS-MORT. — Ces effets ont déjà été étudiés par l'auteur [1], [2]. Par suite de l'effet d'intégration, qui a lieu simulta-

nément, le spectre d'énergie vraie $f(v)$ à l'entrée du sélecteur est donné par :

$$\frac{\dfrac{\Delta n}{1 - Tn_T}}{\sum_1^\infty \dfrac{\Delta n}{1 - Tn_T}} = e^{-n_0\tau} \int_{v-s}^{v+s} f(v)\, dv + (1 - e^{-n_0\tau}) \int_{v-s}^{v+s} h(v)\, dv \qquad (3)$$

avec

$$\sum_1^\infty \frac{\Delta n}{1 - Tn_T} = \frac{n_0}{1 + n_0\tau} \qquad (4)$$

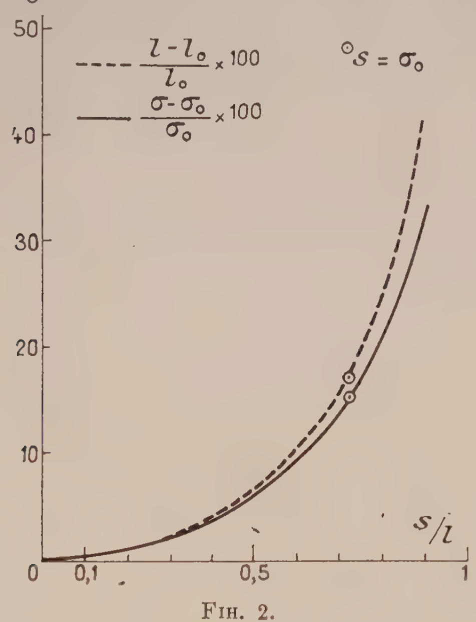
$h(v)$ est la densité générale des impulsions empilées ; τ est le temps actif où le sélecteur fonctionne à la suite de l'arrivée d'une impulsion ; n_T est le nombre d'impulsions déclenchant le temps-mort T pendant la mesure de Δn.

3° Largeur a mi-hauteur de la raie. — Il est commode, et usuel, de mesurer la largeur d'une raie par sa largeur $2l$ à mi-hauteur ; cette grandeur est définie par l'équation :

$$F(v_0 + l + s) - F(v_0 + l - s) = \frac{1}{2}\,[F(v_0 + s) - F(v_0 - s)]$$

où v_0 est l'abscisse du sommet du pic.

La largeur à mi-hauteur n'est donc fonction que de la largeur du canal.



Fih. 2.

La courbe $l(s)$ a la forme générale indiquée par la figure 2. Le calcul de $l(s)$ et de ses dérivées est facile à partir de l'équation précédente. Nous donnerons simplement :

$$\begin{cases} l(0) = l_0, \text{ demi-largeur de la courbe à l'entrée du sélecteur} \\ l'(0) = 0 \\ l''(0) \approx \dfrac{f''(v_0)}{2f'(v_0 + l_0)}. \end{cases}$$

Cette dernière relation montre que l'élargissement est minimum lorsque $f''(v_0)$ est petit et $f'(v_0 + l_0)$ grand, c'est-à-dire lorsque la courbe se rapproche d'une forme carrée. **Le sélecteur tend donc à « équarrir » un pic délié, et il ne modifie pas un pic carré**. Celà est dû à l'intégration inévitable dans un canal de largeur non nulle.

4° Décalage du sommet. — En dérivant l'équation (1) par rapport à v, on voit que le maximum de l'histogramme a lieu pour :

$$f(v + s) = f(v - s)$$

ce qui n'est vrai pour $v = v_0$ *que si $f(v)$ est symétrique.*

Dans le cas général, le sélecteur crée donc un déplacement du sommet du pic, indépendant du dispositif de mesure, par le seul effet de la largeur des canaux.

5° Position des canaux. — L'équation (1) montre assez clairement qu'étant donné un spectre de densité $f(v)$, l'histogramme $\Delta n(v, s)$ ne dépend que de la largeur des canaux ; en particulier, *leur juxtaposition exacte, et leur position par rapport au sommet du pic, n'ont aucune influence. Ce qui importe, c'est la connaissance de leur abscisse v en valeur absolue.*

III. **Cas de la raie gaussienne.** — C'est en particulier le cas du pic photoélectrique d'un rayonnement γ, et de certaines courbes de coïncidences. Il a déjà été examiné en partie [3] ; nous nous proposons d'apporter quelques précisions et applications pratiques.

La densité de probabilité à l'entrée du sélecteur est :

$$f(v) = \frac{1}{\sigma_0\sqrt{2\pi}}\, e^{-\frac{(v - v_0)^2}{2\sigma_0^2}}.$$

Elle est, à la sortie du sélecteur :

$$\varphi(v, s) = \frac{1}{2s}\,[G(v - v_0 + s) - G(v - v_0 - s)]$$

où G est la fonction de Galton $\int_{v_0}^{v} f(v)\, dv$, et σ_0 l'écart-type de la courbe de Gauss.

1° Largeur a mi-hauteur. — Cette largeur $2l$ est définie par l'équation :

$$G\left(\frac{l + s}{\sigma_0}\right) - G\left(\frac{l - s}{\sigma_0}\right) = G\left(\frac{s}{\sigma_0}\right)$$

en prenant maintenant pour variable l'écart réduit :

$$x = (v - v_0)/\sigma_0.$$

La courbe $100(l - l_0)/l_0$ en fonction du rapport s/l représente l'élargissement relatif à mi-hauteur de la courbe (voir *fig.* 2).

2° Largeur au quart de la hauteur. — Cette largeur 2λ est définie par l'équation :

$$G\left(\frac{\lambda + s}{\sigma_0}\right) - G\left(\frac{\lambda - s}{\sigma_0}\right) = \frac{1}{2}\, G\left(\frac{s}{\sigma_0}\right).$$

On trouve que la loi : $\boxed{\lambda = 1{,}41\, l}$ est très bien suivie quel que soit s, en particulier pour $s = 0$.

Cela montre que *l'histogramme expérimental ne s'écarte que très peu d'une forme gaussienne sur les flancs*. C'est bien ce que l'on constate expérimentalement.

3° Écarts-types a la sortie σ et a l'entrée σ_0 du sélecteur. — L'écart-type de sortie σ est donné par :

$$\left(\frac{\sigma}{\sigma_0}\right)^2 = \frac{\sigma_0}{2s} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} x^2 \left[G\left(x + \frac{s}{\sigma_0}\right) - G\left(x - \frac{s}{\sigma_0}\right)\right] dx$$

ce qui conduit à :

$$\boxed{\sigma^2 = \sigma_0^2 + s^2/3}. \quad (5)$$

Cette relation, à la fois rigoureuse et d'une grande simplicité, prouve qu'au moins au 2e ordre, *on peut assimiler l'effet d'intégration par le sélecteur à l'addition d'une variable aléatoire*, de valeur moyenne nulle et d'écart-type $s/\sqrt{3}$, indépendante de l'écart-vrai $v - v_0$ et s'ajoutant à lui.

La courbe $100(\sigma - \sigma_0)/\sigma_0$ en fonction du rapport s/l (voir *fig.* 2) représente l'élargissement relatif de la raie gaussienne, exprimé en termes d'écarts-types.

La courbe s/σ en fonction de s/l (*fig.* 3) montre que l'écart-type σ de la courbe de sortie s'écarte très peu de la loi linéaire :

$$\boxed{\sigma = 0{,}85\, l}$$

c'est-à-dire d'une loi gaussienne.

Par contre, la courbe s/σ_0 en fonction de s/l (*fig.* 3) indique que σ s'écarte beaucoup de σ_0. Celà signifie que *la courbe expérimentale conserve son allure pseudo-gaussienne, même pour des largeurs de canal très grandes, mais qu'elle s'éloigne beaucoup de la raie gaussienne d'origine.*

En pratique, dans les domaines les plus divers, on rencontre souvent de telles courbes « pseudo-gaussiennes ». On risque de commettre une erreur importante en ne tenant pas compte de l'effet d'intégration dans les canaux.

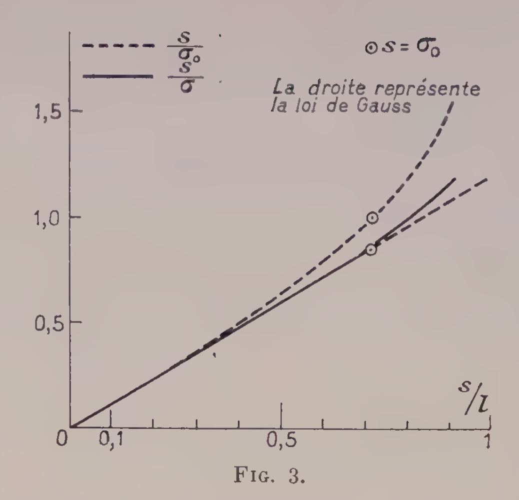


Fig. 3.

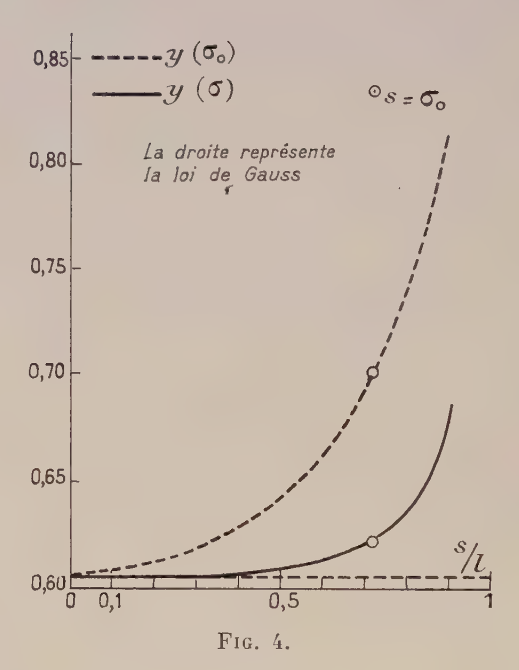


Fig. 4.

4° Ordonnées relatives aux écarts-types σ et σ_0. — L'ordonnée relative au maximum de l'histogramme est :

$$y(v, s) = \frac{G\left(x + \frac{s}{\sigma_0}\right) - G\left(x - \frac{s}{\sigma_0}\right)}{2\, G\left(\frac{s}{\sigma_0}\right)}.$$

Pour $x = 1$ et σ/σ_0 respectivement les courbes $y(\sigma_0)$ et $y(\sigma)$, représentées figure 4, conduisent à la même remarque que précédemment.

5° Calcul de l'activité totale. — Le nombre de coups comptés dans le canal central est :

$$\Delta n_{\max} = 2 n_0\, G(s/\sigma_0).$$

La courbe représentant $\Delta n_{max}/n_0$ en fonction de s/l (*fig.* 5) est rectiligne dans tout le domaine pratique, de sorte que l'on a :

$$\boxed{\Delta n_{max}/n_0 \approx 0,94\ s/l} \qquad (6)$$

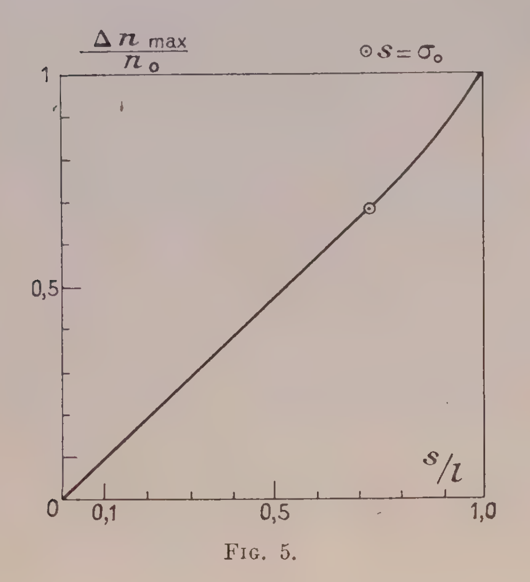


Fig. 5.

et pour densité de probabilité maximum à la sortie du sélecteur :

$$\boxed{\varphi(0) \approx 0,4\ l_0/l}\ . \qquad (7)$$

La densité maxima est inversement proportionnelle à la largeur à mi-hauteur. C'est dire que la courbe de sortie « s'aplatit » assez vite lorsqu'on augmente la largeur des canaux.

On peut tirer de la relation (6) un calcul très simple de l'activité totale n_0 relative à une raie gaussienne. Celà présente en outre l'avantage d'éviter une addition fastidieuse et moins exacte (par suite de la moins bonne précision statistique sur les flancs, de l'effet Compton sur l'aile gauche, de l'effet d'empilement sur l'aile droite, de l'effet de temps-mort, etc...).

$$\boxed{n_0 \approx 1,06(l/s)\ \Delta n_{max}}\ . \qquad (6\ bis)$$

Cette formule a été très bien vérifiée expérimentalement par l'auteur. Elle ne fait intervenir que le rapport l/s, qui est bien caractéristique du phénomène étudié ici, et est facile à mesurer.

6° Influence du sélecteur dans le cas où $s = \sigma_0$. — Supposons la demi-largeur du canal égale à l'écart-type σ_0 de la courbe gaussienne d'entrée. C'est très sensiblement le cas pressenti par R. Foucher, et autres [1]. En fait, on prendra $s = 0,85\ l_0$ au lieu de $0,8\ l_0$. Cela semble présenter les avantages suivants : la largeur de la bande centrale est exactement la largeur théorique de la raie à l'entrée du sélecteur, soit $2\sigma_0$, que l'on a ainsi sans calculs ; le réglage est très facile : le point d'écart s, c'est-à-dire situé sur la frontière du canal central, doit avoir pour ordonnée relative 0,702. Or cette ordonnée $y(s)$ est une fonction décroissante de la largeur du canal.

On peut aussi utiliser la largeur à mi-hauteur, qui est une fonction croissante de s et de s/l. Pour $s = \sigma_0$, on doit avoir : $s/l = 0,722$. On compte 68 % des impulsions de la raie dans le canal central, nombre bien connu et élevé. L'élargissement relatif à mi-hauteur est de 17,5 %, c'est-à-dire pas trop élevé. La figure 6 représente les densités de probabilité gaussienne et de sortie dans le cas où $s = \sigma_0$. On peut y constater une autre propriété intéressante : *pour l'écart $s = \sigma_0$, les 2 densités sont égales* ; autrement dit, *pour ce point privilégié, l'intégration par le sélecteur n'a aucun effet.*

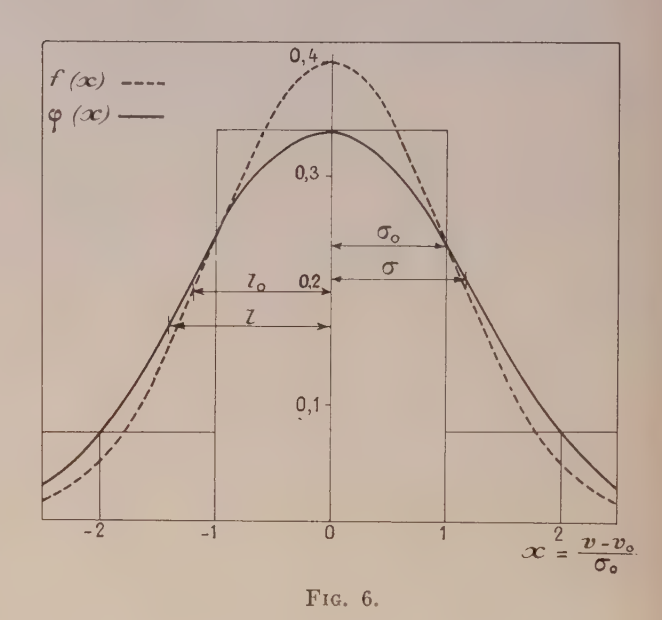


Fig. 6.

IV. **Comparaison de l'élargissement d'un pic photoélectrique par un photomultiplicateur et par un sélecteur d'amplitude.** — 1° Position du problème. — Si le nombre moyen de photoélectrons par impulsion entrant dans le photomultiplicateur est θ, on sait que la dispersion au second ordre à l'entrée du P. M. est $1/\sqrt{\theta}$.

L'effet des fluctuations de l'émission secondaire est de multiplier cette dispersion par le facteur

$$\left[1 + \frac{\mu_2}{\mu_1(\mu_1 - 1)}\right]^{1/2},$$

où μ_1 et μ_2 sont les 2 premiers semi-invariants du gain par étage [4]. Dans le cas d'un pic photoélectrique, la courbe de sortie du photomultiplicateur est gaussienne, d'abscisse v_0 et d'écart-type σ_0, et l'on a :

$$\boxed{\frac{\sigma_0}{v_0} = \frac{1}{\sqrt{\theta}}\left[1 + \frac{\mu_2}{\mu_1(\mu_1 - 1)}\right]^{1/2}}. \qquad (8)$$

A la sortie du sélecteur, l'histogramme a pour écart-type σ, et son abscisse centrale est toujours v_0 (voir II, 4°). Les courbes précédentes permettent de déterminer immédiatement l'élargissement relatif $(\sigma - \sigma_0)/\sigma_0$ à partir du rapport s/l (voir fig. 2).

On peut alors comparer l'élargissement relatif de la raie dû au P. M. seul, soit

$$\left[1 + \frac{\mu_2}{\mu_1(\mu_1 - 1)}\right]^{1/2} - 1,$$

à l'élargissement relatif dû au sélecteur seul, soit $(\sigma - \sigma_0)/\sigma_0$.

2° Résultats expérimentaux. — Le spectre d'énergie de ^{198}Au a été tracé par l'auteur avec un tube E. M. I. 6097-B, un scintillateur INa, et un sélecteur rapide à 10 canaux dont la largeur était de 2 volts (C. E. N., Saclay). Les résultats (*) sont les suivants :

Énergie des γ (MeV)	0,411	0,67	1,09
Abscisse v_0 (volts)	33	52,5	82
s/l	0,67	0,5	0,54
Dispersion à l'entrée du P. M. (%)	2,7	2,1	1,7
Dispersion à la sortie du P. M. (%)	3,4	3,0	1,8
Dispersion à la sortie du sélecteur %)	3,8	3,2	1,9
Élargissement relatif par le P. M. (%)	22	22	22
Élargissement (%) relatif par le sélecteur	12	6	7

3° **Conclusions.** — On voit facilement que le photomultiplicateur seul élargit le pic de 2 à 4 fois plus que le sélecteur seul.

Si l'on tient compte :

1) que l'effet du sélecteur peut être rendu aussi petit qu'on le veut (il suffit de réduire la largeur des canaux), et d'ailleurs facilement calculé quelle que soit cette largeur ;

2) que, pour un scintillateur et une photocathode donnés, la dispersion à l'entrée du P. M. est une constante, que les progrès techniques rendent de plus en plus petite ;

3) que le facteur de bruit $\left[1 + \dfrac{\mu_2}{\mu_1(\mu_1 - 1)}\right]$ est lié au caractère statistique de l'émission secondaire dans les photomultiplicateurs [4] ; il varie beaucoup avec la haute tension appliquée au P. M., le modèle de couche multiplicatrice, etc... ;

4) que l'élargissement relatif par le photomultiplicateur seul est couramment de l'ordre de 25 % ; on conçoit tout l'intérêt et la nécessité de l'étude des fluctuations de gain d'un photomultiplicateur, liées à l'émission secondaire [5].

(*) Les dispersions sont exprimées en termes théoriques, de la forme $\dfrac{\sigma}{v_0}$; les expérimentateurs ont coutume de définir la résolution d'une raie par le rapport $\dfrac{2l}{v_0}$, ce qui donnerait un ordre de grandeur double.

Manuscrit reçu le 22 octobre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Foucher (R.) et autres auteurs, *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 54 A.

[2] Moatti (P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 1742-1744.

[3] Moatti (P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 2366-2368.

ERRATUM

Dans l'article de messieurs Grun (J. B.), Sieskind (M.) et Nikitine (S.), *J. Physique Rad.*, mars 1961, **22**, p. 176, sur la figure 1, en haut à gauche, intervertir les mots *rouge* et *jaune*, et lire :

— — — — *fond continu jaune calculé*
- - - - - - - - *fond continu rouge calculé.*

EXPOSÉ ET MISE AU POINT BIBLIOGRAPHIQUE

LES SOURCES D'IONS A EXCITATION ÉLECTRIQUE DE HAUTE FRÉQUENCE

Par Daniel BLANC et André DEGEILH,

Service de Spectroscopie de Masses, Laboratoire d'Optique Électronique du C. N. R. S., Toulouse.

Résumé. — Les sources à excitation électrique de haute fréquence (ou sources H. F.), délivrent des courants intenses d'ions positifs ; elles sont couramment employées dans les accélérateurs de particules, les microscopes ioniques, les appareils thermonucléaires. Elles produisent des ions presque monocinétiques et sont donc intéressantes pour la spectroscopie de masses. Les publications qui les concernent, assez nombreuses, appartiennent à des domaines très divers, et les données relatives à ces sources s'insèrent souvent dans une étude à caractère plus général. Il nous a paru utile d'effectuer une synthèse de cet ensemble assez disparate, afin d'établir les conditions pratiques d'emploi de ces sources.

Après avoir décrit les modèles usuels de sources H. F., nous procédons à leur classement selon le mécanisme de la décharge (annulaire, linéaire, avec ou sans un champ magnétique auxiliaire). Le problème de l'extraction des ions est ensuite abordé ; nous passons en revue les principaux systèmes d'extraction, ainsi que les paramètres qui conditionnent l'intensité du faisceau extrait. Nous indiquons enfin quelle est la valeur de l'énergie moyenne des ions et la dispersion autour de cette valeur moyenne.

Abstract. — Sources excited by high frequency oscillators (or H. F. sources) give high currents of positive ions, they are of current use in particle accelerators, ion microscopes, thermonuclear apparatus. Producing nearly monoenergetic ions, they are of value for mass spectroscopy. The papers about them, rather numerous, are related to very different matters, so that the data on these sources are found often in a more general study. We have considered that a synthesis of this rather varied material would be useful, in order to state the conditions of practical use of the sources.

After describing the usual models of H. F. sources, we class them according to the mechanism of the discharge (annular, linear, with or without addition of a constant magnetic field). Then, we describe the problem of the extraction of ions ; we describe the principal extraction systems, and we review the various parameters influencing the intensity of the extracted stream. Finally, we give the average ion energy, and the dispersion around this average value.

INTRODUCTION

Cockroft et Walton ont construit le premier accélérateur de protons en 1932. Depuis lors, les sources d'ions (protons, deutons, hélions, etc...) sont les auxiliaires indispensables de toutes les machines accélératrices, quels que soient leur importance et le principe de leur fonctionnement. L'arsenal des sources utilisables est important : tubes à rayons canaux (décharge sous pression élevée), sources à arc (basse pression ou capillaire), systèmes magnétiques à cathode chaude ou à cathode froide, sources à électrons oscillants, sources à émission secondaire, etc... Dans les meilleures conditions, de telles sources fournissent des faisceaux d'ions positifs dont l'intensité ne dépasse pas quelques centaines de microampères.

Or, de nombreuses recherches nécessitent l'emploi de faisceaux ioniques très denses et très stables. Citons, par exemple, les études des interactions nucléaires des particules chargées, la production de neutrons rapides, l'injection d'un faisceau dans un accélérateur de grande puissance, la création de plasmas dans les appareils thermonucléaires, etc... Les sources à excitation électrique de haute fréquence, que nous désignerons par « sources H. F. » dans ce qui suit, constituent la meilleure solution actuelle : elles produisent un courant ionique très intense par une consommation de gaz réduite, le pourcentage des ions monoatomiques est très élevé, et ces ions sont presque mono-cinétiques ; très robustes, stables et d'un emploi facile, elles ne nécessitent pas un apport d'énergie élevé.

Pour que ces qualités apparaissent nettement, les sources H. F. doivent être placées dans des conditions de fonctionnement bien définies et vérifiées avec beaucoup de soin, ce qui explique pourquoi les utilisateurs ne tirent pas toujours le maximum des sources qu'ils emploient. Nous croyons utile de grouper dans cette mise au point les conditions usuelles d'emploi (voir le tableau 1).

TABLEAU I

CONDITIONS D'EMPLOI DES DIVERSES SOURCES ÉTUDIÉES. LEURS CARACTÉRISTIQUES ÉLECTRIQUES.

Les références bibliographiques sont classées dans l'ordre chronologique.
(1) A = annulaire. L = linéaire.
(2) H_l = champ longitudinal (œrsteds). H_t = champ transversal (œrsteds).
(3) Dimensions : diamètre (mm) ; longueur (mm).
(4) Nature. Dimensions (mm).
(5) Rapporté aux conditions normales de température et de pression.

RÉFÉRENCES	[Ru-1]	[Ba-3]	[Ha-1] [Ha-2]	[Th-3] [Th-4]	[Ne-1]	[Al-3]
Nature de la décharge (1)	L	A	L	A	A	A
Gaz utilisé	Hydrogène	Hydrogène Deutérium	Hydrogène Deutérium	Hydrogène Deutérium	Hydrogène	Hydrogène Tritium
Intensité I (milliampères)	0,4	0,5	0,4	0,5	0,6 sans H_t 2,0 avec H_t	0,2
Ions atomiques (%)	60	57 (D^+) 51 (H^+)	60	92 (H^+) 89 (D^+)	40	70
Puissance — Dans la décharge (w.)	30	—	60	50	150	—
Puissance — Dans le générateur (w.)	—	400	—	—	—	—
Fréquence (mégahertz)	180	15,5	450	20	20	25
Débit gazeux (cm³/heure) (5)	15	15	30	15	10	9
Champ magnétique auxiliaire (2)	H_l = 130	—	H_l = 1 000	—	H_t	—
Pression dans la source (microns de mercure)	15	10	100	28	5	—
Canal d'extraction (3)	3,175-12,70	2-12	Φ = 1	2,38-19	4-10	1,78-19,05
Nature de la sonde	Aluminium	Aluminium Dural	Dural	Dural	Aluminium	Dural Aluminium
Chambre à décharge (4)	Pyrex ø = 31,75 l = 183 mm	Pyrex ø = 75 mm l = 110 mm	Pyrex ou quartz ø = 7 l = 10	Pyrex ø = 40 l = 100	Pyrex Sphère de 2 l.	Pyrex ø = 40 l = 115
Tension d'extraction (kilovolts)	2,8	1,2	0	3	0 à 10	3,5
Première tension d'accélération (kilovolts)	14	15	40	30	10	30

RÉFÉRENCES	[Mo-1]	[Bu-1]	[Sw-1] [Sw-2]	[Ba-1]	[Be-1]	[Ci-1]
Nature de la décharge (1)	L	A	A	A	L	L
Gaz utilisé	Hydrogène Deutérium	Hydrogène	Hydrogène	Hydrogène	Deutérium	Hydrogène
Intensité I (milliampères)	1,25	0,058	0,14	0,175	0,25	0,2
Ions atomiques (%)	92	69	80	61,5	—	—
Puissance — Dans la décharge (w.)	60	100	—	—	150	—
Puissance — Dans le générateur (w.)	—	—	100 à 200	200	—	60
Fréquence (mégahertz)	100	25	25	22	100	80
Débit gazeux (cm³/heure) (5)	6	—	1	—	15	—
Champ magnétique auxiliaire (2)	H_l	H_t (faible)	H_t = 9	—	H_l	—
Pression dans la source (microns de mercure)	15	—	—	10	—	50
Canal d'extraction (3)	1,6-6,35	4-12	0,5-3	1,5-12,7	—	Φ = 2
Nature de la sonde	Aluminium	Magnésium	Acier Aluminium	Aluminium	—	Aluminium
Chambre à décharge (4)	Pyrex ø = 25 l = 222,25	Pyrex ø = 50 l = 120	Verre ø = 56 l = 110	Pyrex ø = 40 l = 150	Pyrex	Pyrex ø = 30
Tension d'extraction (kilovolts)	5	5	5	2,2	3	1
Première tension d'accélération (kilovolts)	—	100	50	14,5	150	0

TABLEAU I (*suite*)

Références	[Go-1]	[Ni-1]	[Eu-1]	[La-1]	[Mo-3]	[Al-4]
Nature de la décharge (1)	A	A	A	L	A	A
Gaz utilisé	Hydrogène Deutérium	Hydrogène	Hydrogène	Hydrogène	Hydrogène	Hydrogène Hélium
Intensité I (milliampères)	0,63	2	15	1,0	0,1	0,3 (H^+) 0,2 (He^+)
Ions atomiques (%)	92	80	90	75	85	0,03 He^{++}
Puissance — Dans la décharge (w)	200	300	300	—	100	60
Puissance — Dans le générateur (w)	—	—	—	660	300	—
Fréquence (mégahertz)	27	60	20	96	50	90
Débit gazeux (cm³/heure) (5)	25	—	114	—	1,5	5,7
Champ magnétique auxiliaire (2)	—	$H_t = 30$	—	—	H_t	H_l
Pression dans la source (microns de mercure)	15	10	55	6	10	60
Canal d'extraction (3)	2,38-14	3-15	3,175-15,24	—	1,1-15	0,8-2,75
Nature de la sonde	Aluminium	Aluminium	—	—	Aluminium	Aluminium
Chambre à décharge (4)	Pyrex	Pyrex $ø = 40$	Pyrex $ø = 22,9$ $l = 57$	— $ø = 25$	Quartz $ø = 50$ $l = 90$	— $ø = 25$ $l = 155$
Tension d'extraction (kilovolts)	7	5	5	5	3	8
Première tension d'accélération (kilovolts)	250	50	—	13	10	12

Références	[Ci-2]	[Er-1]	[Bl-5]	[Ci-3]	[Co-4]	[Do-1]
Nature de la décharge (1)	L	A	L	A	A	A
Gaz utilisé	Hydrogène	Hydrogène	Hydrogène	Hydrogène	Hydrogène	Deutérium
Intensité I (milliampères)	0,12	0,7-0,8	0,46	0,139	7	0,5 à 1,4
Ions atomiques (%)	70	—	75	85 à 91	—	—
Puissance — Dans la décharge (w)	—	150	30	—	700	—
Puissance — Dans le générateur (w)	50	—	115	50	—	500
Fréquence (mégahertz)	70	70	150	68	20	30
Débit gazeux (cm³/heure) (5)	30	—	2	—	75	20 à 50
Champ magnétique auxiliaire (2)	$H_t = 180$	$H_l = 50$	$H_l = 500$	$H_t = 60$	—	—
Pression dans la source (microns de mercure)	37	10	1	26	1	—
Canal d'extraction (3)	2,5-12	2-15	1,6-1,2	2,5-12	3-4	$\Phi = 3$
Nature de la sonde	Aluminium	Aluminium	Aluminium	Aluminium	Acier inox	Aluminium
Chambre à décharge (4)	Pyrex $ø = 25$	— $ø = 40$ $l = 150$	Pyrex $ø = 20$ $l = 50$	Pyrex $ø = 25$ $l = 100$	Quartz $ø = 50$ $l = 117,5$	—
Tension d'extraction (kilovolts)	1,8	5	2,5	2	3	5
Première tension d'accélération (kilovolts)	4	0	—	4	15	15

TABLEAU I (*suite*)

Références	[Sk-1]	[Co-2]	[De-1]	[Ga-2]	[Ho-1]	[Se-1] [Se-2]
Nature de la décharge (1)	A	A	A ou L	A	A	A
Gaz utilisé	Hydrogène	Azote Oxygène	Hydrogène Deutérium	Hydrogène	H, He Ne, A	Hydrogène
Intensité I (milliampères)	0,2	1	3 (H) 1 (D)	5-6	—	0,95
Ions atomiques (%)	70	20 à 40 de N^+ ou O^+	—	—	—	80
Puissance — Dans la décharge (w.)	—	—	180 (H) 30 à 200 (D)	—	—	130
Puissance — Dans le générateur (w.)	80	—	—	300	300	—
Fréquence (mégahertz)	27	25	30	40	27	42
Débit gazeux (cm³/heure) (5)	10	36	—	30 à 60	—	8,5
Champ magnétique auxiliaire (2)	—	H_l	H_t ou H_l	H_t = 30 H_l = 750	H_l = 30	H_t
Pression dans la source (microns de mercure)	15	0,8	20	—	5 à 10	15 à 25
Canal d'extraction (3)	2,6-15,8	Φ = 10	—	3-10	0,9-2,5	1,5-7,5
Nature de la sonde	Aluminium	—	—	Aluminium	—	—
Chambre à décharge (4)	Pyrex ø = 34 l = 125	—	— ø = 55 l = 250	Sphérique	volume : 85 cm³	Pyrex ø = 25 l = 90
Tension d'extraction (kilovolts)	3	3	6	5	1,6	5
Première tension d'accélération (kilovolts)	—	—	—	—	22,2	60

Références	[Bl-3]	[Ko-2]
Nature de la décharge (1)	A	A
Gaz utilisé	Argon	Hydrogène Deutérium
Intensité I (milliampères)	0,75 à 1,7	2
Ions atomiques (%)	—	—
Puissance — Dans la décharge (w.)	—	300
Puissance — Dans le générateur (w.)	40	—
Fréquence (mégahertz)	195	110
Débit gazeux (cm³/heure) (5)	0,2 à 25	—
Champ magnétique auxiliaire (6)	—	H_l = 600
Pression dans la source (microns de mercure)	21,5	10
Canal d'extraction (3)	3-6 avec diaphragmes	2,5-16
Nature de la sonde	Aluminium	—
Chambre à décharge (4)	Pyrex ø = 40 l = 100	Pyrex
Tension d'extraction (kilovolts)	4	7
Première tension d'accélération (kilovolts)	15	10

I. MODÈLES DIVERS DE SOURCES H. F.

Les premières réalisations. — Getting [Ge-1] a été le premier à utiliser une décharge continue, obtenue dans un gaz par une excitation électrique de haute fréquence [12,8 méga-hertz (MHz), 100 watts], pour en extraire un faisceau d'ions positifs ; un tube de verre, de forme torique, contenait le gaz ; il était entouré par une bobine, traversée par le courant H. F. Les résultats furent peu encourageants : l'extraction des ions, faite par diffusion, conduisait à une intensité ionique très faible (130 microampères) pour un débit de gaz important.

La source d'Alfvën et Cohn-Peters [Al-1] (*fig.* 1) est plus proche des modèles actuels : une décharge H. F. (100 MHz) est créée entre les deux électrodes planes E_1 et E_2 placées dans un cylindre de verre, rempli d'hydrogène. L'ionisation est augmentée par les électrons secondaires venant des surfaces métalliques ; par contre, la recombinaison des ions sur ces surfaces est très importante. L'électrode négative E_3 a pour rôle d'extraire les ions positifs. Cette source a l'avantage de fonctionner à basse pression (0,25 à 0,4 micron de mercure) mais elle manque de stabilité.

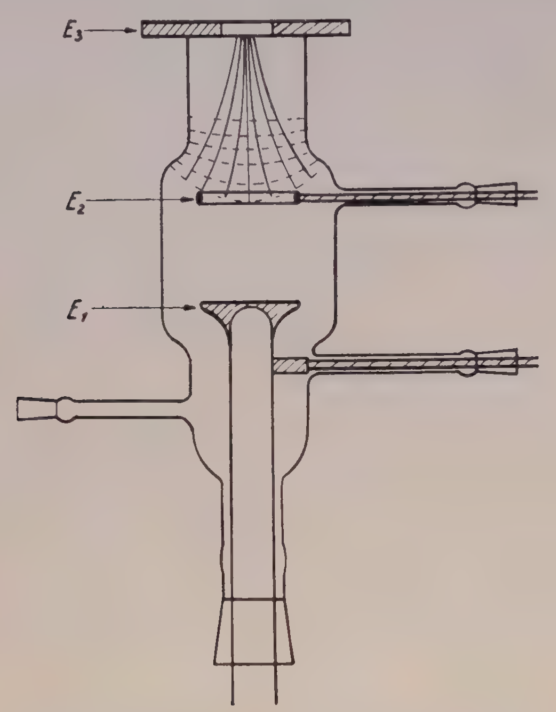


Fig. 1. — Source d'Alfvën et Cohn-Peters [Al-1].

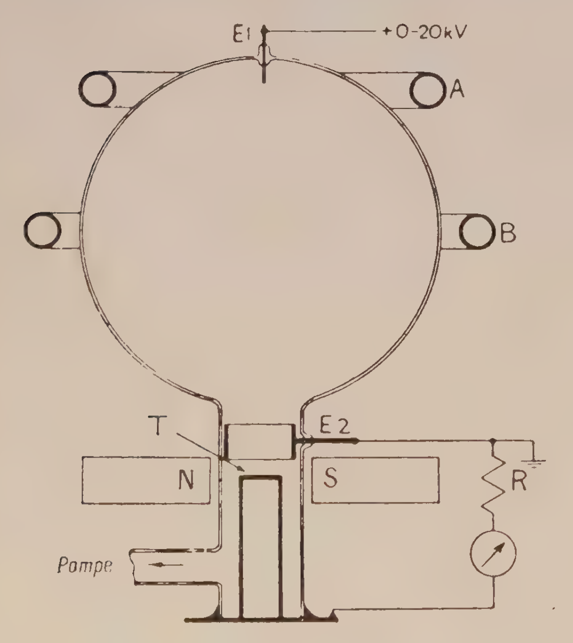


Fig. 2. — La première source H. F. de Thonemann [Th-2].

La première réponse au problème de l'extraction des ions a été donnée en 1946 par Thonemann [Th-2] : un ballon sphérique de pyrex (2 litres) est entouré de deux anneaux externes A et B, reliés à un oscillateur H. F. (60 MHz, 200 watts) (*fig.* 2) ; l'anode E_1 placée à un potentiel positif compris entre 0 et 20 kilovolts et l'électrode d'extraction E_2, à la masse, créent dans la source un champ électrique constant et assurent l'extraction des ions.

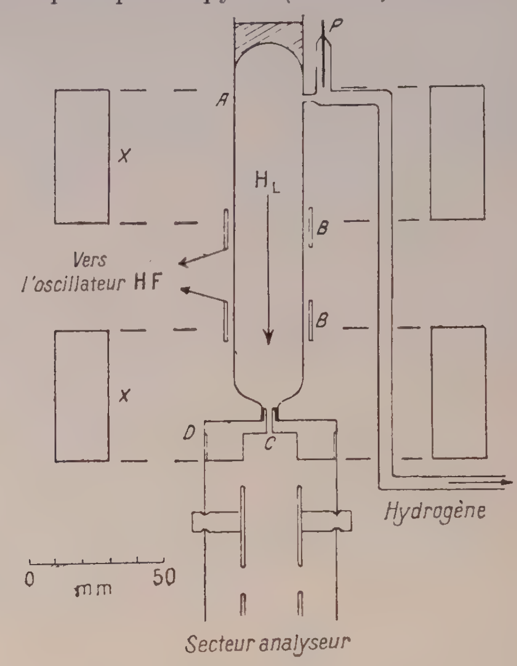


Fig. 3. — Source cylindrique de Rutherglen et Cole [Ru-1].

Les sources H. F. ont pris en 1948 leurs formes actuelles :

1. Rutherglen et Cole [Ru-1], utilisant deux électrodes externes B (*fig.* 3) et un oscillateur de 180 MHz (300 watts), réduisent les surfaces de métal exposées à la décharge pour diminuer la recombinaison des ions. Ils ajoutent un champ magnétique axial, uniforme, (0 à 300 œrsteds). Pour l'hydrogène, le courant ionique est de 400 microampères, la proportion des protons de 60 %.

2. Le modèle de source H. F. de Thonemann, Moffatt, Roaf et Sanders [Th-3] est excellent (voir les *fig.* 4 et 15) : un étranglement placé au sommet de l'enveloppe de la source (pyrex) permet de réduire au strict minimum la surface métallique exposée à la décharge ; de même, l'électrode d'extraction est entourée d'un cylindre de verre. Une bobine entourant la chambre à décharge est couplée inductivement à un générateur H. F. (20 MHz, 50 watts). Pour l'hydrogène, la proportion des protons est comprise entre 84 et 92 %, la dispersion en énergie étant inférieure à 50 eV.

3. L'originalité de la source de Bayly et Ward [Ba-3] réside dans son système d'extraction : l'anode et l'électrode d'extraction, distantes de 1 cm environ, sont placées à la partie inférieure de l'ampoule de verre

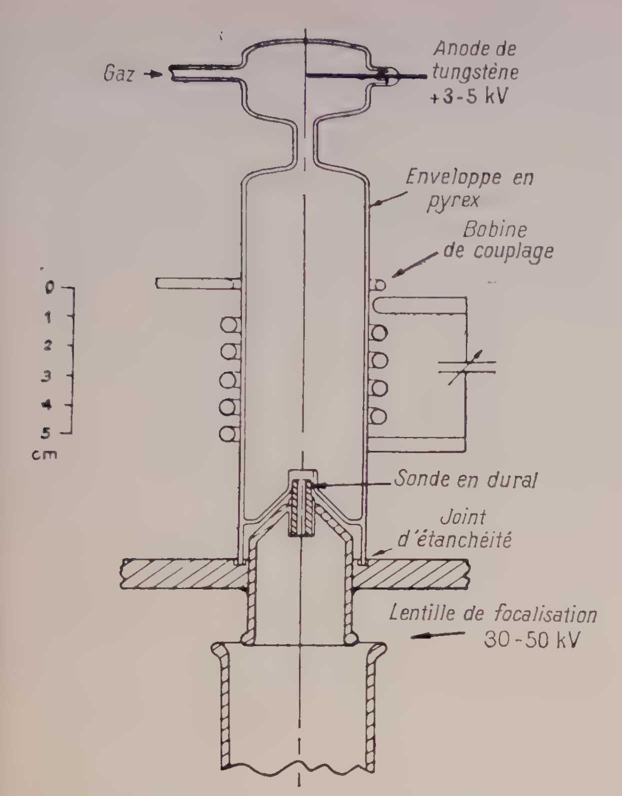


Fig. 4. — Source H. F. cylindrique de Thonemann, Moffatt, Roaf et Sanders [Th-3]. Voir aussi la figure 15.

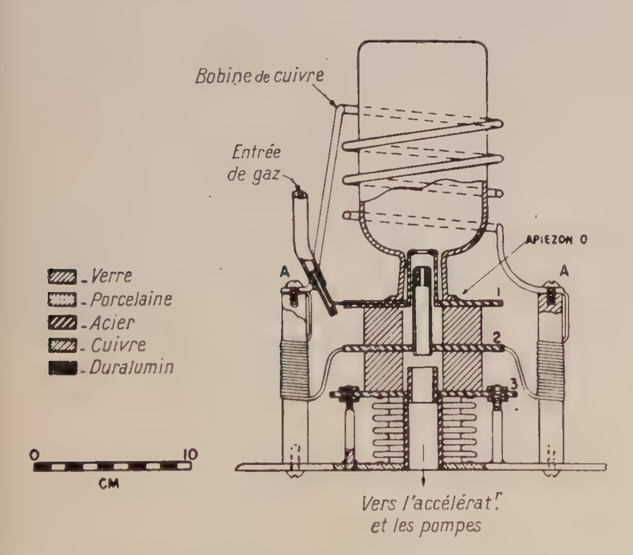


Fig. 5. — La source de Bayly et Ward [Ba-3]. Voir aussi la figure 14.

(*fig.* 5). Hélas, la proportion des ions monoatomiques ne dépasse pas 50 %.

4. La source de Hall [Ha-1], [Ha-2], est nettement différente ; elle est formée par une chambre de faible volume (0,5 cm³) en pyrex (*fig.* 6 et 13), où la pression est beaucoup plus grande que dans les sources précédentes ; un oscillateur de 450 MHz (50 watts) y maintient une décharge sans électrodes. La formation des ions est facilitée par un champ magnétique axial. L'extraction s'effectue par diffusion à travers une ouverture disposée à la partie inférieure de la source. Une source analogue, mais de volume beaucoup plus grand, a été réalisée récemment par Bloom, Rytz et Staub [Bl-5] : grâce à un système d'extraction par électrode, on a fortement diminué le débit de gaz, tout en obtenant un débit ionique voisin de 0,5 mA.

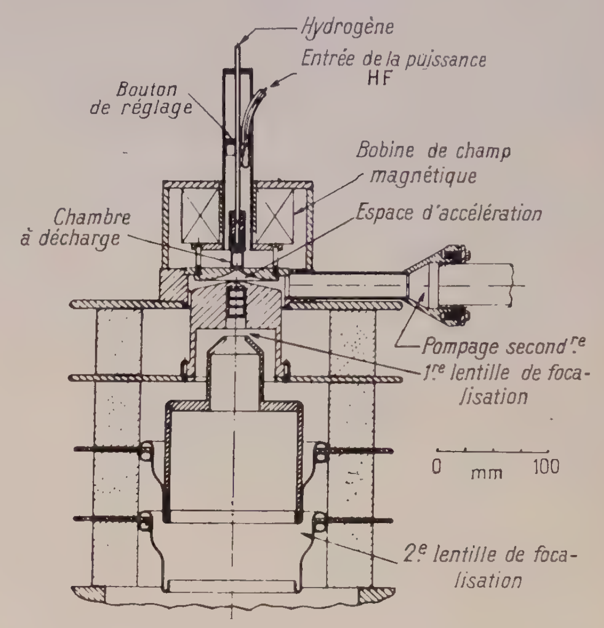


Fig. 6. — Source de faible volume réalisée par Hall [Ha-1], [Ha-2]. Voir aussi la figure 13.

On trouvera dans les articles de Ward (Wa-1] et de Hoyaux et Dujardin [Ho-2] une synthèse détaillée des travaux que nous venons d'énumérer.

Modifications apportées à ces modèles de sources. — Ces prototypes, et surtout la source de Thonemann (*fig.* 4) ont inspiré de nombreux modèles, assez voisins. Nous citerons les principaux, par ordre chronologique.

1. Le système d'extraction de la source de Thonemann a été modifié par Moak, Reese et Good [Mo-1] : le manchon isolant 7 (voir les *fig.* 7 et 16), en silice fondue, couvre le canal de l'électrode d'extraction 4 et isole de la décharge la cathode d'aluminium. Lorsque l'on applique le potentiel d'extraction, c'est-à-dire la tension constante entre l'anode et l'électrode d'extraction, ce manchon fonctionne comme une anode virtuelle. Enfin, le disque de pyrex 2, à la partie supérieure de la chambre, empêche les électrons secondaires venant de l'électrode d'extraction, de frapper l'anode. Allison et Norbeck [Al-4] ont simplifié ce type de sources en supprimant la sonde et son système de protection.

2. Budde et Huber [Bu-1] refroidissent leur source, du type Thonemann, par un courant de pétrole, passant entre la source et une double paroi de verre. Lorsque la puissance dépensée est importante, il devient indispensable de refroidir l'enveloppe de la source, par de

l'air comprimé, par exemple [La-1]. De plus, le refroidissement augmente, semble-t-il, [Ni-1], le pourcentage des ions monoatomiques contenus dans le faisceau extrait.

3. La source de Swingle et Swann [Sw-1], [Sw-2] est une chambre de verre dont le fond plat (*fig.* 8) est formé par un disque amovible. L'électrode d'extraction est un disque d'acier ou d'aluminium, percé axialement.

4. Une source à fonctionnement réglable a été réalisée par Goodwin [Go-1], (*fig.* 9 et 17). Elle est ana-

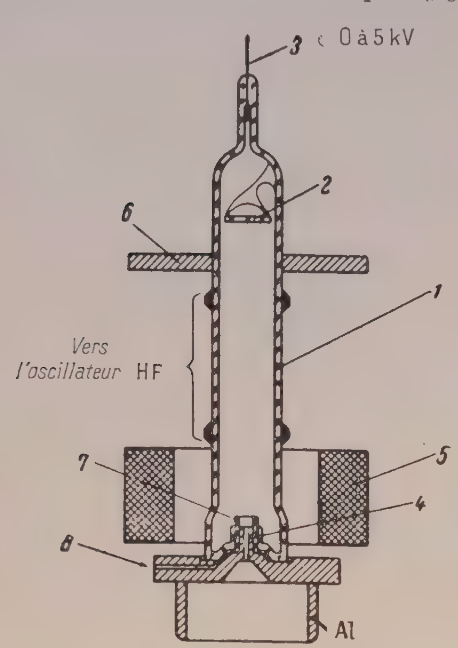


Fig. 7. — Modifications apportées par Moak, Reese et Good [Mo-1] à la source de Thonemann. Voir aussi la figure 16.

1. Pyrex (ø = 25 mm). — 2. Bouclier de pyrex. — 3. Anode. — 4. Sonde. — 5. Aimant permanent. — 6. Disque d'acier. — 7. Silice. — 8. Entrée de gaz.

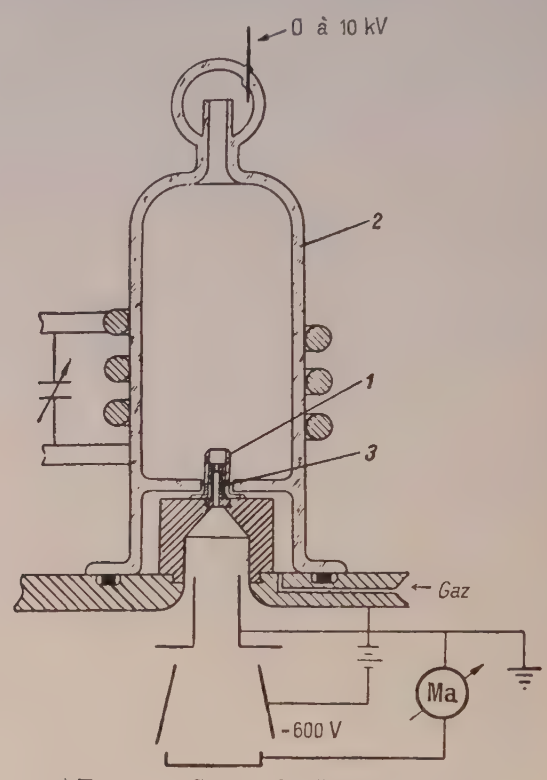


Fig. 9. — Source de Goodwin [Go-1] à électrode d'extraction mobile. Voir aussi la figure 17.

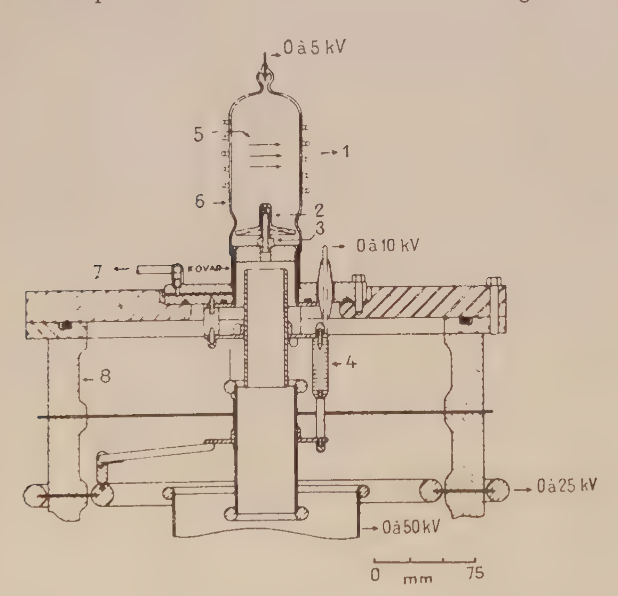


Fig. 8. — Source à fond plat de Swingle et Swann [Sw-1], [Sw-2].

1. Vers l'oscillateur 25 MHz. — 2. Lavite. — 3. Cathode d'aluminium. — 4. Isolant. — 5. Champ magnétique transversal. — 6. Verre. — 7. Entrée de gaz. — 8. Porcelaine.

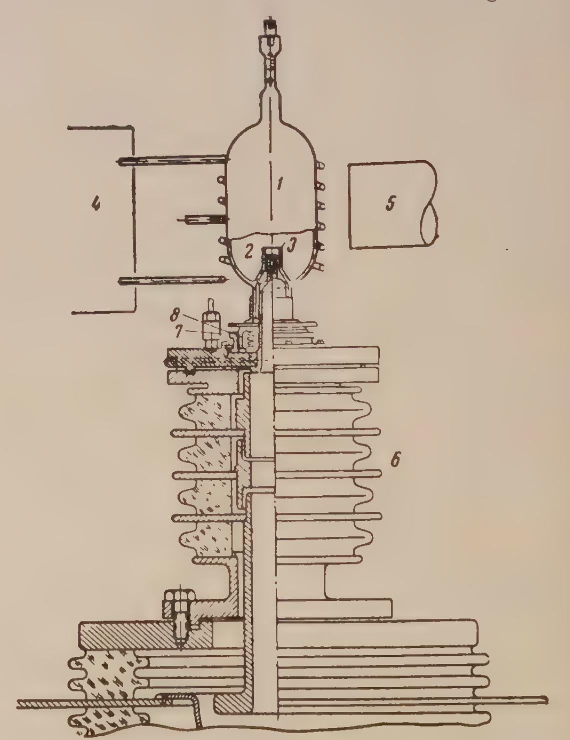


Fig. 10. — Source à chambre mobile. Morozov [Mo-3].

logue au modèle de Moak (*fig.* 7), mais l'électrode d'extraction est mobile selon son axe. De même, Morozov [Mo-3] a construit une source modifiable (*fig.* 10), dans laquelle le cylindre isolant de quartz (2), solidaire de la chambre (1), également en quartz, peut se déplacer par rapport à la cathode (3), fixe.

5. Reifensweiler [Re-3] a souligné l'importance du rôle que joue un diaphragme placé dans le canal de l'électrode d'extraction. Des diaphragmes de ce genre nous ont permis [Bl-3], [Bl-4], d'obtenir des débits ioniques élevés (2 mA) pour une puissance H. F. dépensée faible (40 watts) et des débits gazeux réduits (0,2 à 25 cm³ par heure) [*], sans qu'il soit nécessaire d'employer un champ magnétique auxiliaire (voir plus loin).

6. En vue de leur montage sur les accélérateurs du Commissariat à l'Énergie Atomique, Moreau et Vienet [Mo-2] ont construit des sources associées à des puissances H. F. plus grandes (400 à 500 watts). Le modèle définitif du C. E. A. [Co-4] peut fonctionner avec des oscillateurs de 1 200 à 1 500 watts.

Cette énumération technologique de sources assez voisines est peut-être fastidieuse ; elle est cependant indispensable pour montrer que les sources H. F., variables dans leur géométrie et leur mode de couplage, forment à première vue un ensemble assez disparate. Cependant le fonctionnement de toutes ces sources obéit à des lois précises, qu'il faut dégager. C'est ce que nous allons maintenant analyser.

II. CARACTÉRISTIQUES DE LA DÉCHARGE H. F.

Modes de couplage. — Pour exciter par courant H. F. un gaz sous basse pression (0,1 à 0,01 mm de mercure) — ce qui est le cas dans les sources du type Thonemann — on peut opérer de deux façons [Se-1], [Sk-1] :

1. Par couplage capacitif à l'oscillateur H. F. (*fig.* 11*a*). L'ampoule qui contient le gaz est placée

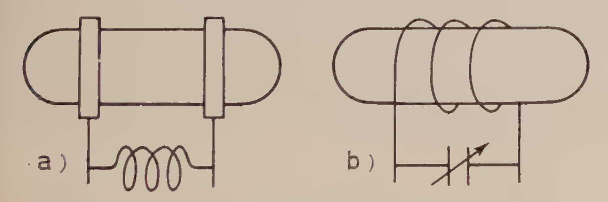


Fig. 11. — Modes de couplage des sources H. F. (*a*) Capacitif. — (*b*) Inductif.

entre deux anneaux métalliques formant les armatures du condensateur d'un circuit oscillant : c'est le champ électrique alternatif créé entre ces deux armatures qui provoque et entretient la décharge. Cette décharge est dite « linéaire », d'après la direction des forces électriques.

2. Par couplage inductif à l'oscillateur H. F. (*fig.* 11*b*). L'ampoule est placée à l'intérieur de la self du circuit oscillant. Au champ magnétique alternatif créé par la bobine s'ajoute un champ électrique axial créé par la différence de potentiel aux bornes de la self. La décharge est « annulaire ».

3. Dans l'un comme l'autre de ces deux cas, la superposition d'un champ magnétique constant augmente considérablement l'intensité de la décharge [Ga-2], [Ko-1], [Ne-1], [Ne-2], [Sk-1]. Dans ce qui suit, nous appellerons « champ transversal » un champ magnétique dont la direction est normale à l'axe de révolution des anneaux capacitifs ou à celui de la bobine de couplage. Un « champ longitudinal » est parallèle à cet axe.

Structure de la décharge H. F. — L'émission d'électrons secondaires depuis les parois de la source joue un rôle fondamental dans l'amorçage et l'entretien de la décharge [Gi-1], [Sa-2], sans que l'on ait encore pu donner l'importance quantitative de ce phénomène. Par contre, il y a une recombinaison des ions sur les parois, surtout sur les électrodes, métalliques : le coefficient de recombinaison, qui est de 2.10^{-5} pour le pyrex et de 7.10^{-4} pour le quartz, atteint l'unité pour les métaux. C'est pourquoi il faut que les surfaces métalliques exposées à la décharge soient aussi faibles que possible.

Cette décharge, dite « sans électrodes », est constituée par une région centrale fortement ionisée, identiquement neutre, où le champ électrique global est nul ; les densités des porteurs de charges positives et négatives étant les mêmes, il s'agit d'une sorte de plasma. Ce plasma est entouré par une gaîne ionique, d'épaisseur inférieure à 0,1 mm, qui l'isole des champs électriques extérieurs (produits par les différences de potentiel entre les électrodes). Le potentiel du plasma est presque égal à celui de l'anode ; la forme du plasma est déterminée par sa densité ionique, la géométrie des électrodes et les potentiels qui leur sont appliqués ; les systèmes d'extraction exploitent cette structure.

Décharge linéaire. — Son emploi est peu courant. Nous nous contenterons de citer quelques réalisations.

1. Sans champ magnétique [Ci-1], [La-1]. — Peu de renseignements ont été publiés. Pour l'hydrogène, la source de Lacoste, Salmon et Watjsbrun [La-1] donne une intensité inférieure à 1 mA pour une puissance H.F. de 660 watts (96 MHz).

2. Champ transversal. — On peut citer [Ci-2] et [Th-2].

3. Champ longitudinal [Be-1], [Bl-5], [De-1], [Mo-1], [Ru-1]. Voir la figure 3. La fréquence de l'oscillateur est généralement comprise entre 100 et 200 MHz ; Hall [Ha-1], cependant, utilise une fréquence de 450 MHz. Le champ le plus intense (750 œrsteds) a été employé par Gabovich [Ga-3].

Décharge annulaire. — Très employée, elle a fait l'objet de nombreuses études.

1. Sans champ magnétique (voir les figures 4 et 5). Dans la plupart des cas, ces sources consomment une puissance comprise entre 100 et 200 watts [Al-3], [Ba-1], [Ga-1], [Ne-1], [Sk-1]. Certains auteurs emploient cependant des puissances plus grandes : Bayly et Ward (400 watts) [Ba-3], Coutant, Prévot et Viénet

[*] Les débits sont toujours rapportés aux conditions normales de température et de pression (0 °C, 76 cm de mercure).

(700 watts) [Co-4], [Co-5], Van Dorsten et Spaa (500 watts) [Do-1], Eubank (300 watts) [Eu-1]. Pour des débits ioniques identiques, et grâce à l'emploi de diaphragme, il est possible d'utiliser une puissance H. F. beaucoup plus faible (40 watts) [Bl-1].

2. Champ transversal (*fig.* 7 et 8). La puissance H. F. est également comprise entre 100 et 200 watts, en général, [Bu-1], [Ci-3], [De-1], [Ne-1], [Se-2], [Sw-1], mais parfois plus grande : Gabovich (300 watts) [Ga-1], Morozov (300 watts) [Mo-3], Nikolic et Crnilovic (300 watts) [Ni-1], Osetinskij (300 watts) [Os-1]. Gabovich [Ga-1] propose de diriger le champ magnétique selon l'axe du canal d'extraction (*fig.* 25).

3. Champ longitudinal. — Ces sources ont fait leur apparition en 1956 [Al-4], [Er-1]. Elles ont fait l'objet d'un certain nombre d'études, dont [Co-2] et [Ko-2].

Conclusion. — D'une façon générale, dans des conditions identiques (puissance H. F., répartition des potentiels, pression, etc...), les sources à décharge linéaire débitent un faisceau ionique moins intense que ceux des sources à décharge annulaire : ceci explique pourquoi on ne les utilise que peu. De plus, pour les décharges annulaires, les fréquences d'excitation (15 à 70 MHz) sont beaucoup plus faibles que celles associées aux décharges linéaires (60 à 450 MHz).

Notons que la comparaison des performances des divers modèles de sources doit être faite avec beaucoup de précautions, car le mode d'extraction des ions joue un rôle essentiel, que nous allons maintenant étudier.

III. LE PROBLÈME DE L'EXTRACTION DES IONS.

Généralités. — Cette question est liée à deux quantités :

1. Le débit gazeux. — Il faut éviter un flux de gaz trop important dans la région où sont accélérés les ions. De plus, certains gaz sont coûteux : leur débit doit être réduit dans toute la mesure du possible.

2. La charge d'espace. — Elle limite l'intensité du faisceau ionique extrait. D'après Langmuir et Campton (*Rev. Mod. Physics*, 1931, **3**, 237), cette intensité J du faisceau, en ampères par cm² de la surface émissive, est donnée par :

$$J = K \cdot \frac{1}{d^2} \sqrt{V^3/M}.$$

Avec : d = distance séparant la surface du plasma de l'électrode d'extraction (cm).
V = différence de potentiels (volts).
M = masse atomique des ions (u. m. a.).

Du côté de l'électrode négative (ou « sonde ») de la source, la limite du plasma est une surface équipotentielle, que les ions quittent normalement pour aller converger vers l'orifice d'extraction.

La forme de cette surface équipotentielle conditionne la qualité de l'extraction. D'après Thonemann [Th-5] (*fig.* 12), cette surface varie en fonction de la différence de potentiel entre les électrodes (1) et (2) : pour une valeur convenable de V, la concavité de la surface équipotentielle favorise la focalisation des ions vers l'ouverture de la sonde. Quand l'électrode d'extraction est un cylindre, la limite du plasma est rigoureusement sphérique [Sk-1], mais il est difficile de définir exactement sa position, les résultats expérimentaux restant

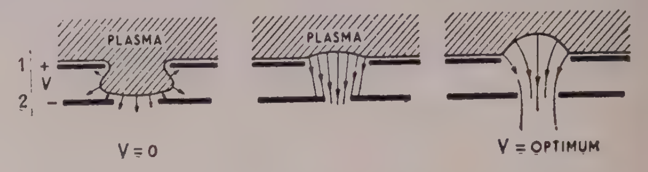


Fig. 12. — Formes possibles de la surface équipotentielle limitant le plasma. D'après Thonemann [Th-5].

incomplets. On peut seulement affirmer que la limite du plasma s'éloigne de la sonde quand le potentiel d'extraction augmente, ou que la puissance H. F. décroît [Wa-1].

Procédés d'extraction. — 1. Extraction par diffusion des ions vers l'espace d'accélération, extérieur à la source. Cette diffusion s'effectue à travers un diaphragme d'épaisseur aussi faible que possible ; les ions quittent la surface émissive avec l'énergie moyenne $\left(\frac{3}{2} kT\right)$, k étant la constante de Boltzmann et T la température cinétique ; cette énergie est faible, et la charge d'espace a tendance à envoyer les ions sur les parois de l'orifice d'extraction, où ils se neutralisent ; c'est pourquoi le diaphragme doit avoir une épaisseur très faible. La pression dans la source est de l'ordre de 0,1 mm de mercure, et la consommation de gaz est élevé : il faut effectuer un pompage supplémentaire, au-dessous de la source et avant le système d'accélération et de focalisation des ions.

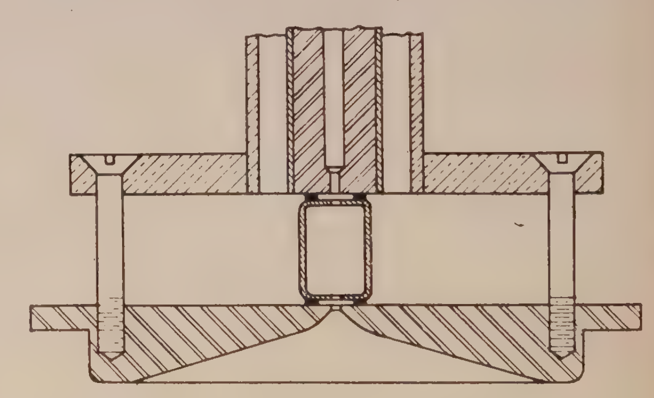


Fig. 13. — Détail du système d'extraction par diffusion de la source de Hall [Ha-1]. Voir aussi la figure 6.

A titre d'exemple, on trouvera sur la figure 13, tirée de [Ha-1], le système d'extraction de la source de Hall (*fig.* 6).

2. Extraction par sonde. — Cette méthode est presque universellement utilisée. La forme de cette sonde (électrode d'extraction) définit les performances de la source ; selon cette forme l'intensité du faisceau ionique peut varier dans le rapport de 1 à 40 [Th-3]. Dans la source, la pression est comprise entre 0,1 et 0,01 mm de mercure, et il faut utiliser une ouverture de

diamètre assez faible pour réduire les fuites de gaz vers le système d'extraction, où règne un vide élevé. Les diamètres sont toujours inférieurs à 4 mm, ce qui rend inutile tout système de pompage supplémentaire. Selon la position de l'anode, on distingue deux systèmes possibles d'extraction :

— Système de Thonemann (*fig.* 4 et 14*a*) : l'anode est à la partie supérieure de la chambre d'ionisation ; la tension d'extraction est appliquée dans une région où la pression est relativement élevée (0,1 à 0,001 mm de mercure). C'est ce système qui conduit aux meilleurs résultats pratiques.

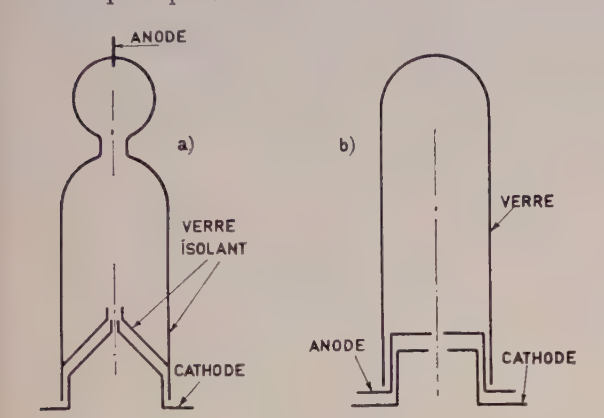


Fig. 14. — Les deux modes possibles d'extraction ionique par sonde : (*a*) Thonemann, (*b*) Ward.

— Système de Ward (*fig.* 5 et 14*b*). Ce système a été déjà décrit plus haut : les deux électrodes, rigoureusement coaxiales, sont à la base de la chambre. L'anode constitue le support de la source et se trouve en contact avec le plasma. Ici, la tension d'extraction est appliquée dans une région où la pression est faible (10^{-4} mm de mercure ou moins) [Wa-1], [Mo-2], [Re-4].

Description de quelques systèmes d'extraction. — L'extraction par diffusion, pratiquement abandonnée, ne sera pas étudiée.

1. Dispositifs classiques. — Le premier système de Thonemann (*fig.* 15), celui de la source de la figure 4 [Th-3], se présente sous la forme d'un canal long de 19 mm, dont le diamètre intérieur est 2,38 mm. La cathode (1) est en dural, ce qui évite une émission importante d'électrons secondaires. Le cylindre de verre (2), isolant, fait saillie dans la chambre ; il sépare la surface métallique du plasma, dont la limite se fixe à l'entrée de (2).

Nous avons indiqué plus haut que Moak, Reese et Good [Mo-1] ont modifié ce dispositif en introduisant un manchon isolant de silice, coaxialement au canal de la cathode. On voit sur la figure 16 que ce manchon recouvre entièrement le canal. Il est essentiel que les axes de ces deux pièces coïncident exactement [Sk-1], [Th-5]. D'après Moak, le courant extrait est réduit de 80 % quand le sommet de la cathode est de forme conique (ouverture : 140°) et de 95 % lorsqu'il est hémisphérique. Il faut donc que le bord supérieur du canal soit plat [Mo-1].

Le manchon de silice joue un rôle essentiel parce que son potentiel est approximativement égal à celui du plasma : la limite du plasma se maintient à l'entrée du manchon [Mo-1], [Th-5], qui définit la forme de la surface émettrice d'ions et gouverne ainsi la topographie du faisceau extrait [Re-3]. Servant d'anode virtuel [Sk-1], ce manchon isole le plasma de la cathode [Er-1] : on évite ainsi les claquages, qui sont

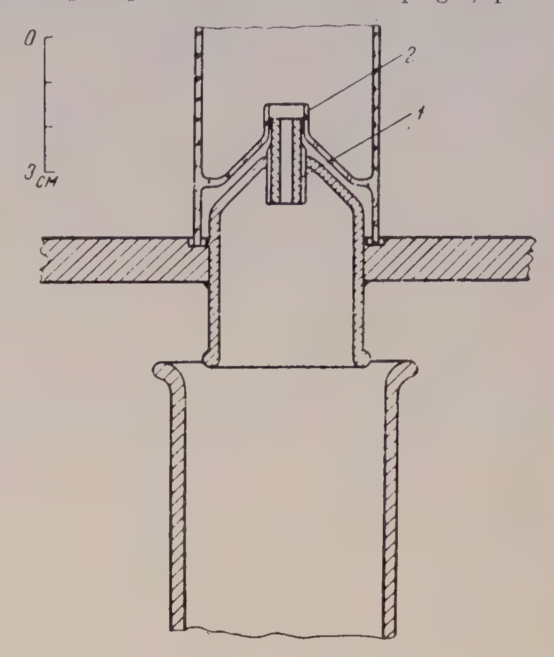


Fig. 15. — Détail du système d'extraction de la source de Thonemann [Th-3]. Voir la figure 4.
1. Cathode : ø = 2,38 mm, l = 19 mm. — 2. Partie isolante (verre ou quartz).

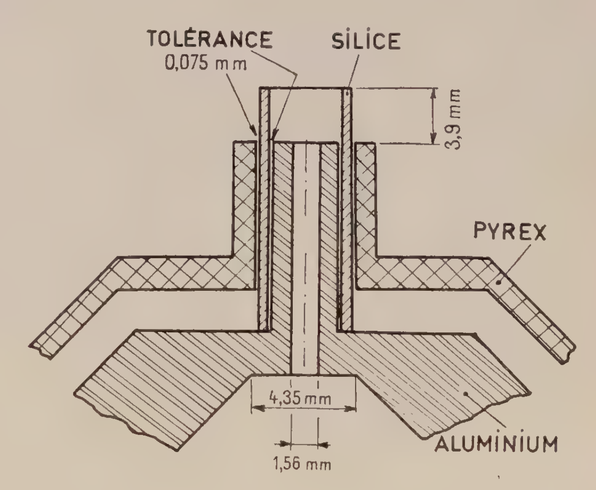


Fig. 16. — Détail du système d'extraction de la source de Moak [Mo-1]. Voir la figure 7.

dus, en général, à la souillure de la surface de cette électrode par une condensation de vapeur d'huile résiduelle du pompage, aux endroits les plus exposés au bombardement ionique [Er-1].

Dans le système de Ward, l'anode forme un cylindre devant la sonde et remplit le rôle du manchon isolant.

La position du bord supérieur du canal d'extraction

par rapport au bouclier isolant (disque de verre ou manchon) constitue un paramètre critique du fonctionnement de la source [Al-3], [Eu-1], [Ga-3], [Re-1], [Re-3]. D'après Goodwin [Go-1], la profondeur h de l'électrode d'extraction dans le manchon isolant doit être égale au diamètre externe de cette électrode : on

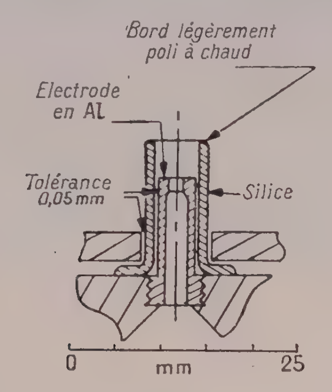


Fig. 17. — Détail du système d'extraction de la source de Goodwin ($h = 4$ mm) [Go-1]. Voir la figure 9.

trouvera sur la figure 17 le système d'extraction de la source de Goodwin.

Un choix convenable de diamètre D du manchon (*fig.* 19) améliore considérablement la focalisation [Mo-1] ; c'est ce qu'ont montré Gabovich et Pjankov [Ga-3] : d'après la figure 18, obtenue pour le système

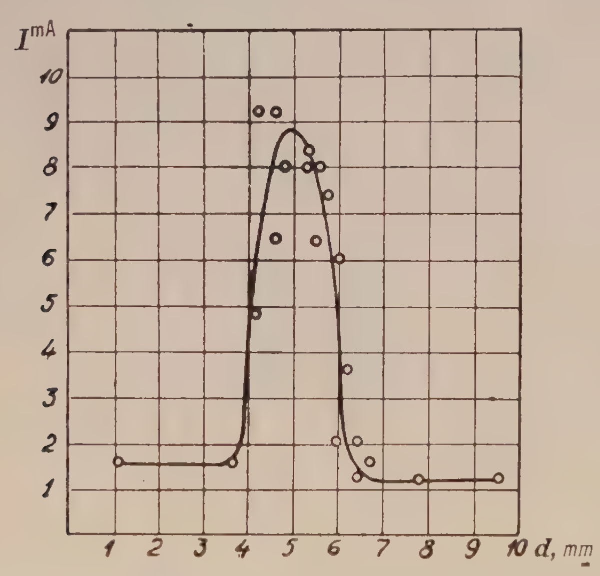


Fig. 18. — Variation de l'intensité I du faisceau ionique extrait en fonction du diamètre d du canal d'extraction [Ga-3] pour la géométrie de la figure 19.

de la figure 19, une valeur de 5 mm correspond aux conditions optimales.

Pour la disposition géométrique de la figure 20, Serbinov [Se-2] a fait une étude expérimentale très détaillée de l'influence des dimensions du système d'extraction sur les performances de la source. La focalisation optimale du faisceau d'ions dans le canal de la cathode correspond à $L/d = 5$ et $D/d = 2$, ($0{,}6\ D \leqslant l \leqslant 0{,}8\ D$). Le rapport D/d influe sur la valeur de la tension d'extraction pour laquelle le rapport du courant extrait au courant ionique tombant sur la cathode est maximal ; cette tension optimale croît avec (D/d) [Al-3], [Eu-1], [Se-2]. Plusieurs auteurs ont mis en évidence l'existence de cette tension optimale [Bl-3], [Mo-3], [Th-5], [Th-6], [Wa-1]. Enfin,

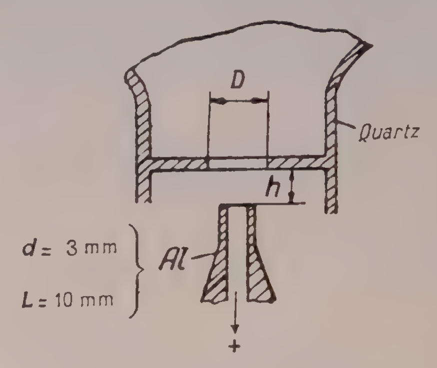


Fig. 19. — Système d'extraction de Gabovich et P'Jankov [Ga-3].

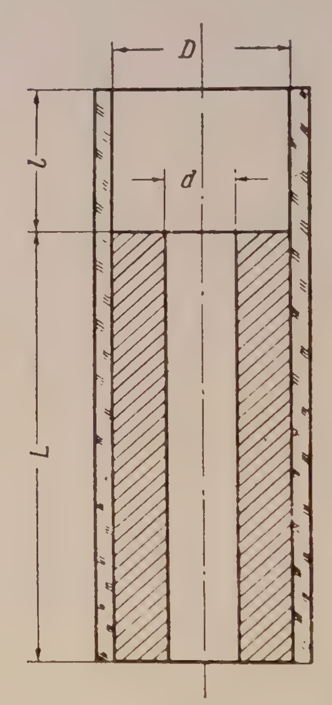


Fig. 20. — Système d'extraction étudié par Serbinov [Se-2].

quand on utilise un champ magnétique auxiliaire, la position de la sonde dans le manchon isolant devient fonction de la distribution du champ [Ni-1].

Le nombre élevé des paramètres fait que, dans l'état actuel des choses, les dimensions à adopter pour tout nouveau système d'extraction doivent être déterminées expérimentalement en tenant compte des diamètres du canal et du bouclier isolant ; Reifenschweiler [Re-3], [Re-4], a bien énoncé des lois de similitude concernant les dimensions du canal, mais elles ne sont pas encore

étayées par des vérifications expérimentales satisfaisantes.

Pour compliquer encore les choses, la focalisation du faisceau dépend également de l'état superficiel de la paroi interne du col de l'isolant : la pulvérisation sur cette paroi d'une couche de métal venant de la cathode détériore les qualités de la lentille ionique que forment la limite du plasma et l'électrode d'extraction. Ce dépôt modifie en effet la distribution du potentiel électrique sur l'isolant [Mo-3], [Sk-1].

2. Emploi d'un diaphragme dans le canal d'extraction. — Les études de la propagation des ions dans le canal d'extraction, effectuées par Reifenschweiler [Re-1] constituent le point de départ de l'utilisation d'un diaphragme. Cet auteur utilise une cathode (d = 3 mm, L = 19 mm) divisée en trois sections électriquement isolées (*fig.* 21), ce qui permet

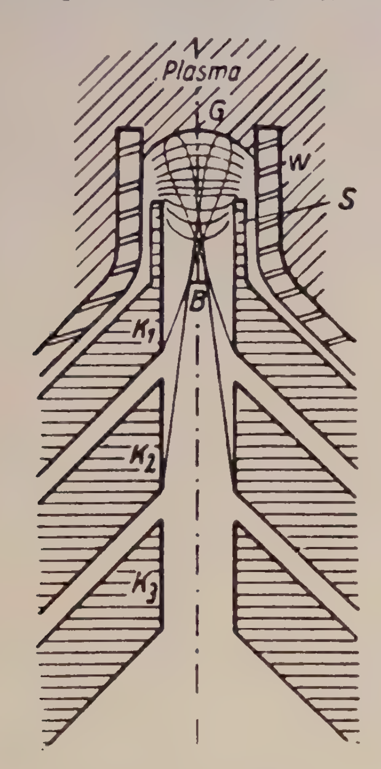


Fig. 21. — Électrode d'extraction coupée en trois sections. Reifenschweiler [Re-1].

de mesurer le courant ionique capté par chacune de ces sections. Reifenschweiler constata ainsi qu'il existe une région de resserrement du faisceau dans la partie supérieure du canal. Plaçant un diaphragme dans le canal (*fig.* 22*a*), Reifenschweiler [Re-3] trouva que le débit ionique est augmenté dans un rapport voisin de 1,5, et que la consommation de gaz est divisée par deux. L'introduction d'un diaphragme dans les dispositifs d'extraction du type Ward [Re-4] conduit à des résultats analogues (*fig.* 22*b*). Bien qu'encore assez peu utilisés, [Do-1], [Ho-1], les diaphragmes permettent de réaliser des sources très stables et à fort débit ionique [Bl-3], [Bl-4].

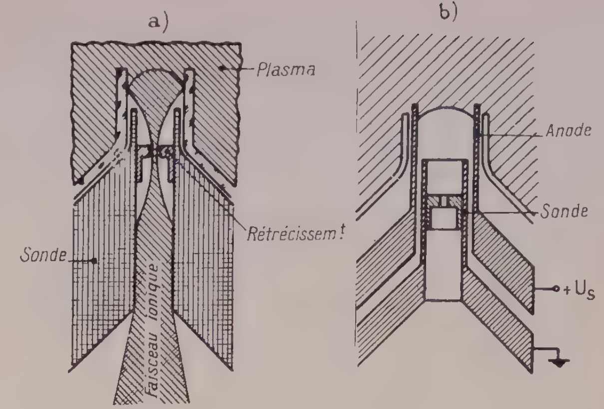


Fig. 22. — Utilisation d'un diaphragme :
a) Dans un système d'extraction type Thonemann.
b) Dans un système d'extraction type Ward-Reifenschweiler [Re-3].

3. Sources a grand débit ionique. — Il faut que la focalisation des ions soit excellente pour que l'on puisse parvenir à un débit élevé : la surface limite du

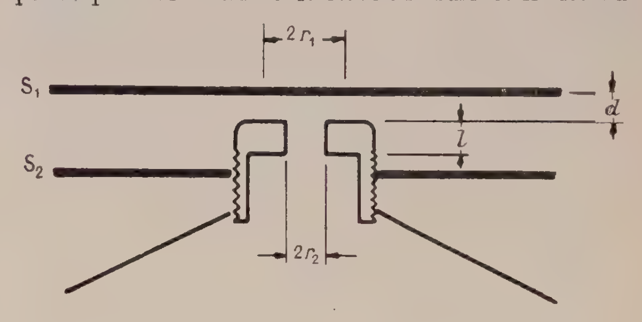


Fig. 23. — Système d'extraction de Thonemann et Harrison [Th-6].

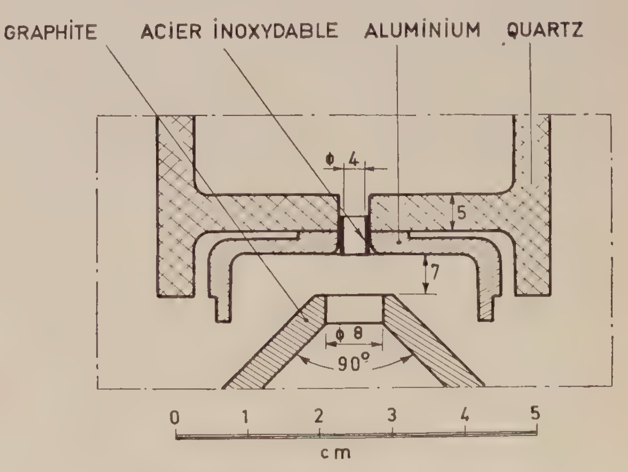


Fig. 24. — Système d'extraction de Coutant, Prévot et Viénet pour source à débit élevé [Co-5].

plasma doit donc être hémisphérique. Pour réaliser cette condition, Thonemann et Harrison [Th-6] utilisent des électrodes planes (*fig.* 23) : S_1 est non conducteur, S_2 est la cathode. Une telle disposition donne des sources très stables, dans lequelles on n'observe pas

de phénomènes disruptifs entre la cathode et le plasma [Al-4], [Bl-1], [Co-4], [Ga-3]. Moreau et Viénet [Mo-2] ont adapté ce dispositif à un système du type Ward, ce qui assure un isolement excellent entre le plasma et l'anode. Coutant, Prévot et Viénet [Co-5] ont réalisé un système analogue (*fig.* 24) pour des potentiels d'extraction très élevés (10 à 15 kilovolts) : la source, de puissance élevée (700 watts) fournit 7 mA pour une consommation de gaz de 75 cm³ par heure (conditions normales de pression et de température).

4. Role de la charge d'espace. — L'existence d'un canal d'extraction a pour conséquence que la charge d'espace joue un rôle important. D'après Spangenberg, cette charge d'espace limite le courant à travers le canal à une valeur maximale proportionnelle à $(d/L)^2$, d étant son diamètre L sa longueur (voir la *fig.* 20). Pour diminuer les effets de cette charge d'espace, on pourrait augmenter d, mais la formule de Knudsen montre que le débit de gaz passant dans le canal est proportionnel à (d^3/L) ; il est donc préférable de diminuer la longueur L et de placer un diaphragme de diamètre convenable [Bl-4] dans le canal d'extraction.

A la sortie de la source, la charge d'espace produit une divergence du faisceau et il faut réaliser une focalisation ultérieure. On place en général au-dessous du canal une lentille électrostatique à champ intense.

IV. PARAMÈTRES GOUVERNANT L'INTENSITÉ DU FAISCEAU EXTRAIT.

Nous venons de faire une analyse globale de la décharge H. F. et du processus d'extraction. Nous basant sur les résultats publiés, nous allons maintenant étudier l'influence individuelle des divers paramètres de la décharge.

Potentiel d'extraction — Nous avons vu que ce potentiel définit la surface limite du plasma, donc la focalisation des ions dans le canal d'extraction : sa valeur doit être choisie avec soin. Cette valeur varie avec la pression [Fo-1], [La-1] et avec la puissance H.F. dissipée dans la source [Co-4], [Go-1]. Lorsque l'on place un diaphragme dans le canal d'extraction, la valeur de ce potentiel joue un rôle très important [Bl-2]. Un champ magnétique constant, transversal [Ga-2] ou longitudinal, [Ko-2], produit les mêmes effets qu'une augmentation du potentiel d'extraction.

Champ magnétique auxiliaire. — Des chercheurs soviétiques [Ga-2], [Ko-2], ont mesuré l'augmentation du courant ionique résultant de l'adjonction d'un champ auxiliaire : pour une puissance H. F. de 300 watts, consommée dans la décharge, le débit peut atteindre 5 mA ; l'intensité de la décharge est considérablement augmentée [Be-1], [Ne-1], [Ne-2].

1. Champ transversal. — Pour une fréquence H. F. donnée, l'intensité du faisceau extrait passe par un maximum très marqué en fonction de l'intensité du champ [Ko-1]. Il se produit un effet de résonance [Ga-2], [Mo-3], [Se-2], car la fréquence H. F. correspond alors à la fréquence f du cyclotron [Ha-1] :

$$f = eB/2\pi mc.$$

L'intensité du champ correspondant est généralement faible et comprise entre 10 et 60 œrsteds. L'augmentation de l'intensité du champ transversal produit une concentration de la luminosité de la décharge vers l'axe de la source [Ci-2], [Ni-1]. Les chercheurs soviétiques [Mo-3], [Os-1] effectuent la régulation de l'intensité de la décharge en modifiant l'intensité du champ transversal.

2. Champ longitudinal. — La densité ionique de la décharge diminue à mesure que l'on se rapproche de l'axe de la source [Ga-2]. On peut établir un champ uniforme dans la totalité du volume de la chambre [Ho-1], [Ru-1], ou se contenter d'un champ local à la base de la source : le champ agit en effet sur la position de la limite du plasma près de la cathode et réduit, dans le canal, la dispersion due à la charge d'espace [Al-4], [Mo-1]. L'augmentation de l'intensité du faisceau extrait ne vient pas d'un effet de résonance et les champs employés sont beaucoup plus élevés (300 à 1 000 œrsteds) que dans le cas d'un champ transversal.

Gabovich [Ga-2] a étudié avec beaucoup de soin l'influence du champ magnétique. Il a montré que, dans le cas d'un couplage capacitif, le champ doit être longitudinal mais que, pour un couplage inductif, il faut utiliser un champ transversal, c'est-à-dire normal à l'axe de la bobine d'induction. Il a été ainsi conduit à réaliser une source (*fig.* 25) à décharge annulaire, dans laquelle le champ transversal est parallèle de l'électrode d'extraction.

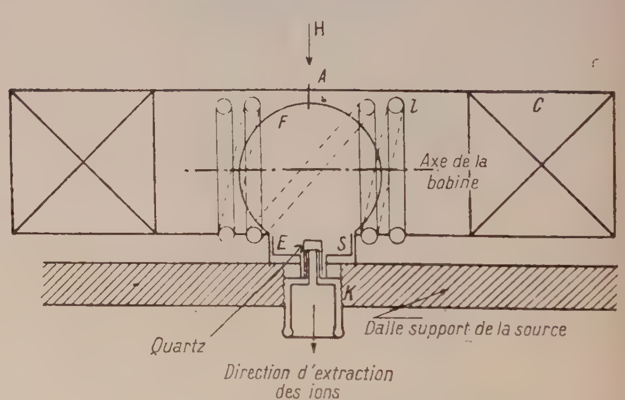


Fig. 25. — Source à décharge annulaire et champ transversal. Gabovich [Ga-2].

Puissance H. F. dissipée dans la source. — L'augmentation de la puissance H. F. intensifie la décharge : on le remarque à l'accroissement de la luminosité du gaz [Co-4], [Do-1], [Eu-1]. Cependant, en particulier à cause de la charge d'espace, le courant extrait passe par un maximum en fonction de cette puissance [Co-4], [Ho-1]. Pour des performances pratiques données, un champ magnétique constant permet — nous l'avons vu — de diminuer la puissance H. F. [Ho-1], [Sw-1].

Pression dans la source. — Liée au débit de gaz, elle constitue un paramètre fondamental du fonctionnement : le courant ionique extrait passe en effet par un maximum en fonction de la pression [Bl-4], [Ci-2], [Eu-1], [Ho-1].

Pour des diaphragmes de différents diamètres introduits dans le canal d'extraction, nous avons prouvé [Bl-4] qu'il existe une pression optimale, et une seule (*fig.* 26). Dans une source remplie d'argon sous cette

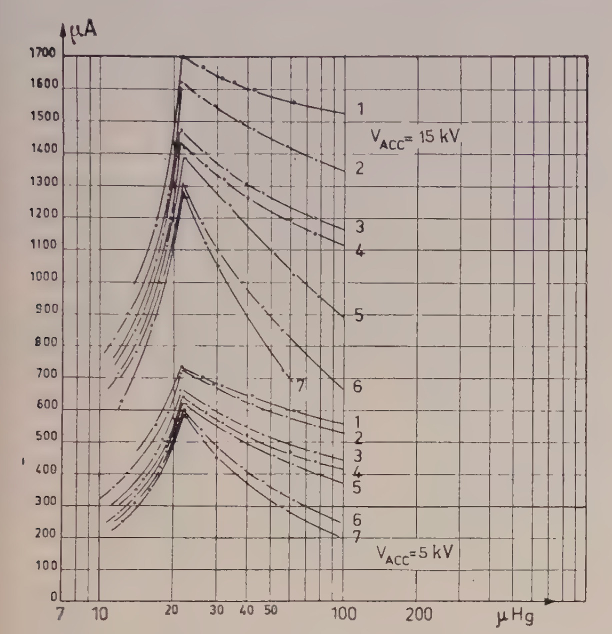


Fig. 26. — Variation du courant ionique extrait avec la pression, pour des diaphragmes de différents diamètres placés dans le canal d'extraction [Bl-4].

pression optime (21,5 microns de mercure) la consommation de gaz varie de 25 cm³ par heure pour un diaphragme de 3 mm de diamètre, à 1 cm³ par heure pour un diaphragme de 0,8 mm de diamètre. L'intensité du courant ionique correspondant varie de 1,7 mA à 1,05 mA.

Fréquence de l'oscillateur. — Les utilisateurs ont souvent le tort de ne pas prêter d'attention à l'influence de ce paramètre. Nous ne pourrons donc donner que quelques indications assez fractionnaires.

— Dans le cas d'un couplage inductif, les fréquences sont généralement de l'ordre de 100 MHz [Ba-1], [Go-1], [Mo-1]. Ces valeurs assez peu élevées ont l'avantage de réduire le chauffage diélectrique des parois de la chambre [Sk-1] ; par contre on est conduit à employer des sources de grand volume [Gi-1], [Mo-1].

— Il est important de noter que, pour un couplage inductif, l'absorption d'énergie dans le plasma est favorisée par une augmentation de la fréquence [Ni-1], [Se-2]. Nous pensons donc que, chaque fois que l'on veut employer un oscillateur de faible puissance, il faut, par contre, choisir une fréquence élevée [Bl-2], [Ba-3].

— En présence d'un champ magnétique transversal, nous avons vu plus haut que le courant ionique extrait passe par un maximum quand la fréquence correspond à celle du cyclotron [Ha-1].

— Enfin, on a remarqué qu'il faut augmenter avec la fréquence l'intensité du champ magnétique, quand il est longitudinal [Ba-1], [Co-4].

V. CONSTITUTION DU FAISCEAU EXTRAIT.

Cette question est d'une très grande importance pour les accélérateurs de particules et pour la spectroscopie de masses.

Proportion des ions monoatomiques. — On a surtout étudié l'hydrogène et le deutérium, par analyse magnétique.

1. Résultats obtenus. — Accélérant des ions d'hydrogène sous 15 kilovolts et faisant l'analyse par un champ électrique et un champ magnétique (400 œrsteds) croisés, Rutherglen et Cole [Ru-1] ont obtenu 60 % de protons dans le faisceau extrait de la source représentée sur la figure 3. Avec la source de la figure 5, Bayly et Ward [Ba-3] ont obtenu 51 % de protons. Par contre, avec la source de la figure 4, Thonemann, Moffatt, Roaf et Sanders [Th-3] ont obtenu 89 % de deutérons pour une pression de deutérium de 25 microns de mercure dans la source, et 92 % de protons avec une pression d'hydrogène de 26 microns de mercure dans la source : la réduction des surfaces métalliques exposées à la décharge explique ce pourcentage élevé [Ba-1], [Mo-1], [Ni-1].

Pour les sources actuelles, le pourcentage des ions monoatomiques est compris entre 70 et 92 %, selon les modèles (voir le tableau 1).

2. Paramètres divers. — Ils sont nombreux et ont des effets assez complexes.

a) *Recombinaison des ions dans la chambre à décharge.* — Nous avons eu l'occasion de souligner l'importance de la nature des parois [Ha-2], mais leur état de propreté superficielle constitue un élément prépondérant [Ci-1], [Mo-1]. Cilensek, Cvelbar et Ramsak ont constaté [Ci-2] que le nettoyage de la chambre par une solution diluée d'acide fluorhydrique (5 à 10 %) augmente fortement la proportion des protons. Skurmik [Sk-1] obtient 90 % de protons après un nettoyage par une solution d'acide fluorhydrique, alors que, après nettoyage par de l'éthanol puis de l'eau distillée, cette proportion ne dépasse pas 50 %. La structure superficielle des parois se modifie lentement lors du fonctionnement de la source, et le pourcentage des ions monoatomiques diminue après 70 heures de fonctionnement, environ [Kh-1], [Sk-1].

b) Le *refroidissement régulier* des parois de la source assure une bonne stabilité à la proportion d'ions monoatomiques extraits [Ni-1], [Sw-1].

c) Cette proportion augmente avec *la puissance H. F* [Ha-2], [Re-3], [Sk-1].

d) Elle augmente aussi si l'on ajoute *un champ magnétique constant*, transversal [Ne-1], [Ni-1], ou longitudinal [Sk-1].

e) *La pression*, enfin, joue un grand rôle, [Ba-3], [Ha-2], mais on manque de données quantitatives concernant son action. Notons que Cilensek, Cvelbar et Ramsak [Ci-2] considèrent que l'influence d'un champ magnétique ou de la pression serait nulle.

f) L'emploi d'un *mélange de gaz* permet d'augmenter le pourcentage des ions monoatomiques. Bayly et Ward ont expérimenté des mélange [Ba-3] d'hydrogène et d'hélium, d'argon, de vapeur d'eau ou d'oxygène ;

le débit ionique est plus faible, mais le pourcentage des protons est augmenté. Par contre, d'après Cilensek, Cvelbar et Ramsak [Ci-3], la présence de vapeur d'eau diminuerait le pourcentage des protons ; tout semble dépendre, en fait, des proportions relatives des deux constituants gazeux. Arnold [Ar-1] a constaté que, pour un mélange d'hélium et d'hydrogène (12,5 % en proportions atomiques), le pourcentage des protons est le même que pour de l'hydrogène pur ; un mélange d'hélium et de tritium conduit au même résultat en ce qui concerne les tritons.

Énergie des ions extraits. — On s'est rendu compte très vite [Ha-2] que les énergies des ions doivent être assez homogènes : d'après Bayly et Ward [Ba-3], la dispersion ne dépasserait pas 100 eV. Les recherches concernant cette question sont encore peu nombreuses, et nous ne pouvons présenter que des résultats fragmentaires.

1. Valeur moyenne de l'énergie. — La presque totalité des ions est créée à l'intérieur du plasma. D'après la théorie de Langmuir, leur énergie correspond donc au potentiel du plasma, supérieur de quelques volts à celui de l'anode. Ce point a été vérifié expérimentalement [La-1]. Les électrons secondaires venant de la cathode et les ions émergeant du plasma produisent une ionisation dans la couche obscure, voisine de la cathode ; l'énergie des ions ainsi créés correspond au potentiel du point où ils sont formés. Ils ne constituent heureusement qu'une fraction très faible (1 à 2 %) du nombre total des ions (Er-1).

La première mesure directe du spectre d'énergie du faisceau a été faite par Erö en 1956 [Er-1], avec un analyseur électrostatique placé directement à la sortie d'une source à décharge annulaire : l'énergie moyenne est supérieure de 50 à 100 volts à la tension continue appliquée à la décharge. D'après Erö, cette énergie moyenne pourrait dépasser la tension anodique d'une quantité égale à la valeur maximale de la tension H. F. appliquée à la bobine de couplage. Sur l'hydrogène, Forst a effectué en 1958 [Fo-2] une séparation magnétique : aux ions dont l'énergie correspond au potentiel de l'anode s'ajoutent des ions d'énergie moyenne plus faible, qui proviendrait de la variation du potentiel superficiel sur les parois de la chambre. Holz et Löb [Ho-1] enfin, ont montré que des ions se forment au voisinage du canal d'extraction.

2. Dispersion autour de la valeur moyenne. — Les résultats sont assez variables, car la dispersion dépend des conditions d'emploi de la source : 40 à 50 eV [Th-4], 200 eV [Ci-1], 60 à 70 eV [Mo-1], etc...

Ero a obtenu [Er-1] une dispersion inférieure à 50 eV pour des ions ayant une énergie de 4 000 eV, correspondant à une tension d'extraction de 4 000 volts. La dispersion diminue avec le champ H. F., le courant anodique et le potentiel d'extraction [Er-1], [Sk-1]. Ce même auteur, utilisant un analyseur électrostatique (127°) à grande vitesse, a enregistré en 20 microsecondes la totalité du spectre [Er-2], avec une grande précision : la dispersion obtenue est voisine de 50 eV. L'emploi d'un champ H. F. de démodulation permet de parvenir à une dispersion inférieure à 10 eV.

Forst [Fo-2], avec de l'hydrogène, obtient une dispersion de 70 eV pour les ions dont l'énergie moyenne correspond au potentiel de l'anode, et une dispersion voisine de 1 000 eV pour le groupe d'énergies plus faibles (voir plus haut). Il a noté que, si la dispersion dépend de la puissance H. F., de la pression et du potentiel anodique, elle est indépendante de l'état superficiel des parois et de la géométrie de l'électrode d'extraction. Enfin, la dispersion est d'autant plus faible que la masse des ions est plus grande [Fo-2].

VI. APPLICATIONS DES SOURCES H. F.

Ces sources, dont la durée de vie est comprise entre 100 et 200 heures de marche [Co-4], [Go-1], [Kh-1], [Re-4], trouvent de nombreuses applications.

Accélérateurs de particules. — Fournissant une proportion élevée d'ions monoatomiques, elles sont très utilisées dans les accélérateurs de particules, où on les préfère en général aux sources du type Penning.

1. Production de particules de faible énergie. — Tous les modèles de sources décrits plus haut sont employés dans les appareils de ce genre, généralement du type Cockroft-Walton. Les publications abondent : [Al-4], [Bi-1], [Da-1], [Eu-1], [Go-1], [Ha-1], [Ko-2], [Ma-2], [Mo-3], [Se-1], etc...

La source de Moak, par exemple, équipe l'accélérateur de 0,3 MeV du Centre d'Oak-Ridge ; le faisceau de protons, d'ions $(_2He^3)^+$ ou $(_2He^4)^+$, est focalisé sous la forme d'un spot de 3 mm de diamètre, à 2 mètres de la base de la source [Mo-1].

Dans les générateurs de neutrons rapides utilisant les réactions (D-D) ou (D-T), ces sources permettent d'obtenir un faisceau très intense [Ba-1], [Be-1], [Co-1], [De-1], [Ko-2], [Ma-3], etc... A titre d'exemple, l'accélérateur de Dorsten et Spaa [Do-1], de 300 à 1 000 kilovolts, produit plus de 10 milliards de neutrons par centimètre et par seconde, en utilisant une source de 30 MHz et 500 watts, débitant 0,5 à 1,4 mA de deutérons ; ce flux neutronique est identique à celui d'une source de (Ra-Be) de 1 000 curies.

2. Accélérateurs de Van de Graaff. — Les sources H. F. y sont couramment employées [Go-1], [Gr-1], [Sk-1], [Sw-1]. Magnac-Valette et Liess [Ma-1] ont conçu une source consommant 5 cm³ par heure d'un mélange d'hydrogène et de tritium (0,5 cm³ de tritium pour 25 cm³ d'hydrogène) spécialement destinée à un accélérateur de Van de Graaff.

3. Domaine des hautes énergies. — Des sources fonctionnant en impulsions permettent d'injecter des bouffées de particules dans le système d'accélération ; la source de Malkiel et Sukhanov [Ma-5] produit, pendant une microseconde, 100 à 200 mA de protons ou de deutérons, avec une fréquence de répétition de 1 000 par seconde. Cette source (30 MHz) consomme 30 watts en moyenne ; son rendement en protons ou en deutérons est compris entre 80 et 90 % ; elle débite 30 cm³ par heure, environ.

Spectroscopie de masses. — Ces sources sont applicables à la spectroscopie de masses [Bl-1], où il est important de disposer d'un faisceau ionique d'inten-

sité très stable ayant une très faible dispersion d'énergie [Ha-2], [Se-2].

Microscopie ionique. — Des sources H. F. ont équipé le microscope protonique par transmission de Magnan et Chanson [Ma-4].

Production d'ions négatifs. — En inversant les polarités, Khirnij [Kh-1] a produit des ions $(H)^-$ (20 microampères) et $(D)^-$ (15 microampères) dans le capillaire d'une source H. F. ; le débit de gaz est important (28 cm³ par heure). Il en est de même pour la source de Phillips et Tuck [Ph-2], qui produit des ions $(H)^-$ avec un débit gazeux de 20 à 25 cm³ par heure.

Production d'ions lourds. — Cornides, Roosz et Siegler [Co-3] ont construit une source d'ions $(Li)^+$ du type Thonemann ; l'échantillon est chauffé extérieurement dans un tube de nickel. Utilisant de l'hydrogène comme support gazeux, ils obtiennent une intensité de 0,5 microampère en ions lithium. Un tel dispositif pourrait rendre de grands services, en spectroscopie de masses, pour l'analyse de certains échantillons solides.

Nous sommes heureux d'exprimer notre très respectueuse gratitude à M. le Directeur Général G. Dupouy, pour l'intérêt constant qu'il a pris à cette étude, et pour l'appui qu'il nous a prodigué.

Manuscrit reçu le 17 août 1960.

Note ajoutée aux épreuves. — Signalons également la source H. F. de Guidini [Gu-1] fonctionnant en impulsions successives. et qui a fait l'objet d'une note intérieure au C. E. A. Cette source, avec une fréquence d'excitation de 20 MHz, peut fournir jusqu'à 33 mA de protons, pour une puissance instantanée de 10 kW et un débit gazeux de 52 cm³ T. N. P. par heure.

BIBLIOGRAPHIE

[Ak-1] AKHIEZER (A. I.), FAINBERG (Y. B.), SITENKO (A. G.), STEPANOV (K.), KURILKO (V.), GORBATENKO (M.) et KIROCHRIN (U.), Conf. Intern. Appl. Pac. Énergie Atomique, Genève, 1958, vol. **31**, rapport n° P/2300.

[Al-1] ALFVEN (H.) et COHN-PETERS (H. J.), *Ark. Mat. Astron. Fys.*, 1945, **31**-A, 1.

[Al-2] ALLEN (J. E.), BOYD (R. L. F.) et REYNOLDS (P.), *Proc. Phys. Soc.*, G.-B., 1957, **70**-B, 297.

[Al-3] ALLEN (K. W.), ALMQUIST (E.), DEWAN (J. T.) et PEPPER (T. P.), *Canad. J. Phys.*, 1951, **29**, 557.

[Al-4] ALLISON (J. K.) et NORBECK (F.), *Rev. Sc. Instr.*, 1956, **27**, 285.

[Al-5] ALMAZOV (A. V.) et KHIRNIJ (J. M.), *Pribory Tech. Eksper*, S. S. S. R., 1957, **5**, 54.

[An-1] ANDERSON (C. E.) et EHLERS (K. W.), *Rev. Sc. Instr.*, 1956, **27**, 809.

[Ar-1] ARNOLD (W. R.), *Rev. Sc. Instr.*, 1952, **23**, 97.

[Ba-1] BANERJEE (A. N.), *Ind. J. Phys.*, 1953, **27**, 523.

[Ba-2] BARJON (R.) et SCHMOUKER (J.), *J. Physique Rad.* 1956, **17**, 594.

[Ba-3] BAYLY (A. J.) et WARD (A. G.), *Canad. J. Research*, 1948, **26**-A, 69.

[Be-1] BEAUREGARD (J. de), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 547.

[Bi-1] BILWES (R.), SELTZ (R.), SUFFERT (M.), LIESS (M.), NEHLIG (J. J.) et MAGNAC-VALETTE (D.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 183.

[Bl-1] BLANC (D.) et DEGEILH (A.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 61-S.

[Bl-2] BLANC (D.) et DEGEILH (A.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1959, **248**, 1647.

[Bl-3] BLANC (D.) et DEGEILH (A.), *J. Physique Rad.*, 1959, **20**, 55-A.

[Bl-4] BLANC (D.) et DEGEILH (A.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1960, **250**, 3313.

[Bl-5] BLOOM (M.), RYTZ (A.) et STAUB (H.), *Helv. Phys. Acta*, 1957, **30**, 292.

[Bu-1] BUDDE (R.) et HUBER (P.), *Helv. Phys. Acta*, 1952, **25**, 459.

[Bu-2] BURGMAN (J. O.), *Ark. Fys. Sverige*, 1958, **13**, 259.

[Ci-1] CILENSEK (E.), *J. Stef. Inst. Phys. Reports*, 1953, **1**, 45.

[Ci-2] CILENSEK (E.), CVELBAR (F.) et RAMSAK (V.), *J. Stef. Inst. Phys. Reports*, 1956, **3**, 87.

[Ci-3] CILENSEK (E.), CVELBAR (F.) et RAMSAK (V.), *J. Stef. Inst. Phys. Reports*, 1957, **4**, 117.

[Co-1] COLLI (L.), MICHELETTI (S.) et SALVETTI (C.), *Nuovo Cimento*, 1958, **9**, 538.

[Co-2] COOK (J.) et PETTERSON (J. R.), *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1958, **3**, 40.

[Co-3] CORNIDES (J.), ROOSZ (J.) et SIEGLER (A.), *Nucl. Instr.*, 1957, **1**, 94.

[Co-4] COUTANT (J.), PREVOT (F.) et VIENET (R.), *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 643.

[Co-5] COUTANT (J.), PREVOT (F.) et VIENET (R.), Rapport C. E. A. n° 195, 1960.

[Da-1] DAVID (J. E.), KRAFT (I.), BOUCHEZ (R.) et FELICI (N.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 435.

[De-1] DEPRAZ (J.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 86.

[De-2] DESJONQUIÈRES (J.), GELLER (R.), PREVOT (F.) et VIENET (R.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 166.

[De-3] DESJONQUIÈRES (J.) et GELLER (R.), *Le Vide* 1957, **12**, 161.

[Do-1] DORSTEN (A. C. Van) et SPAA (J. H.), *Nucl. Instr.*, 1957, **1**, 259.

[Er-1] ERÖ (J.), *Acta Phys. Acad. Sc. Hungar.*, 1956, **5**, 391.

[Er-2] ERÖ (J.), *Nucl. Instr.*, 1958, **3**, 303.

[Eu-1] EUBANK (H. P.), PECK (R. A.) et TRUELL (R.), *Rev. Sc. Instr.*, 1954, **25**, 989.

[Fi-1] FIRTH (K.) et CHICK (D. R.), *J. Sc. Instr.*, 1953, **30**, 117.

[Fo-1] FORST (G.) et SCHWEDA (S.), *Phys. Verhl.*, 1957, **8**, 198.

[Fo-2] FORST (G.), *Z. Angew. Phys. Dtsch*, 1958, **10**, 546.

[Ga-1] GABOVICH (M. D.) et KOUTCHERENKO (E. T.), *J. Tech. Phys.*, *J. P. T.*, 1956, **26**, 998.

[Ga-2] GABOVICH (M. D.), *Zh. Tekh. Fiz.*, S. S. S. R., 1958, **28**, 872.

[Ga-3] GABOVICH (M. D.) et P'JANKOV (G. N.), *Ukr. Fiz. Zh.*, 1958, **3**, 419.

[Ga-4] GARWIN (R. L.), *Rev. Sc. Instr.*, 1958, **29**, 374.

[Ge-1] GETTING (Y. A.), *Phys. Rev.*, 1941, **59**, 467.

[Gi-1] GILL (E. W. B.) et ENGEL (A. Von), *Proc. Roy. Soc.*, London, 1948, **192**-A, 446.

[Go-1] GOODWIN (L. K.), *Rev. Sc. Instr.*, 1953, **24**, 635.

[Gr-1] GREJBINE (T.), MOREAU (R.), OLKOWSKY (B.), PHILIPS (G. C.), PAUL (G. B.), FERGUSON (A. T. G.) et WHITEHEAD (A. B.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 108.

[Gu-1[GUIDINI (J.), *Note C. E. A.* n° 225 (1958).

[Ha-1] HALL (R. N.), *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1948, **23-24**, 7.

[Ha-2] Hall (R. N.), *Rev. Sc. Instr.*, 1948, **19**, 905.
[Ho-1] Hölz (R.) et Löb (H.), *Z. Naturforsch. Dtsch*, 1958, **13**-a, 602.
[Ho-2] Hoyaux (M.) et Dujardin (I.), *Nucleonics*, 1949, **4**, n° 5, 24.
[Ho-3] Hoyaux (M.), Lemaitre (R.) et Gans (P.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 80-A ; *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 264.
[In-1] Inall (E. K.), *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**-B, 1068.
[Ka-1] Kamke (D.), *Hand. Physik*, 1956, vol. **23**, 71.
[Kh-1] Khirnyj (J. M.), *Prib. Tekh. Eksper.*, S. S. S. R. 1958, **2**, 51.
[Ko-1] Koch (B.) et Neuert (H.), *Z. Naturforsch. Dstch.*, 1949, **4**-a, 456.
[Ko-2] Kowalewski (V. J.), Mayans (C. A.) et Hammersclag (M.), *Nucl. Instr.*, 1959, **5**, 90.
[La-1] Lacoste-Lareymondie (M. de), Salmon (J.) et Watjsbrun (J.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 117.
[La-2] Lacoste-Lareymondie (M. de) et Salmon (J.), *Ann. Physique*, 1958, **3**, 319.
[Ma-1] Magnac-Valette (D.) et Liess (M.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 449.
[Ma-2] Magnac-Valette (D.), Suffert (M.), Liess (M.) et Cuer (P.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 88.
[Ma-3] Magnan (C.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 592.
[Ma-4] Magnan (C.) et Chanson (P.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1951, **233**, 436.
[Ma-5] Malkiel (G. S.) et Sukhanov (B. I.), *Pribory Tekh. Eksper.*, S. S. S. R., 1958, **3**, 100.
[Me-1] Meyerand (R. G., Jr.), *Mass. Inst. Tech., Res, Lab. Electr.*, Quarterly progress report, 1957, n° **47**, 3.
[Mi-1] Michelis (B. de), *Energ. Nucl. Ital.*, 1958, **5**, n° 3, 175.
[Mo-1] Moak (C. D.), Reese (H.) et Good (W. M.), *Nucleonics*, 1951, **9**, n° 3, 18.
[Mo-2] Moreau (J.) et Vienet (R.), Rapport C. E. A., n° AC-4972 (janvier 1957).
[Mo-3] Morozov (V. M.), *Dokl. A. N.*, S. S. S. R., 1955, **102**, 61.
[Mu-1] Mukherjee (S. K.) et Majumdar (N. K.), *Indian Sc. Congress Ass.*, 1956, **3**, 29.
[Ne-1] Neuert (H.), *Z. Naturforsch. Dtsch.*, 1949, **4**-a, 449.
[Ne-2] Neuert (H.), Stuckenberg (H.) et Weidner (H. P.), *Z. Angew. Phys.*, 1954, **6**, 303.
[Ni-1] Nikolic (M. B.) et Crnilovic (M. U.), *Bull. Inst. Nucl. Sc.*, « Boris-Kidrich », 1953, **3**, 29.
[Os-1] Osetinskij (G. M.), *Pribor. Tekh. Eksper.*, S. S. S. S. R., 1958, **2**, 101.
[Pa-1] Pauli (R.) et Flinta (J.), *Nucl. Instr.*, 1958, **2**, 227.
[Ph-1] Phillips (G. C.), Paul (E. B.), Ferguson (A. T. G.) Whitehead (H. B.), Griebine (T.), Moreau (R.) et Olkowsky (B.), *Nucl. Instr.*, 1958, **3**, 43.
[Ph-2] Phillips (J. L.) et Tuck (J. L.), *Rev. Sc. Instr.*, 1956, **27**, 97.
[Re-1] Reifenschweiler (O.), *Z. Naturforsch. Dtsch.*, 1951, **6**-a, 331.
[Re-2] Reifenschweiler (O.), *Phys. Verhdlg Dtsch.*, 1952, **3**, 16.
[Re-3] Reifenschweiler (O.), *Ann. Physik*, 1954, **6**, 34.
[Re-4] Reifenschweiler (O.), *Elektrotechn. Masch-Bau, Osterr.*, 1957, **74**, n° 5, 96.
[Ru-1] Rutherglen (J. G.) et Cole (J. F. I.), *Nature*, 1947, **160**, 545.
[Sa-1] Salmon (J.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 33.
[Sa-2] Salmon (J.), *Ann. Physique*, 1957, **2**, 827.
[Se-1] Serbinov (A. N.) et Petrov (V. I.), *Pribor. Tekh. Eksper.*, S. S. S. R., 1958, **5**, 3.
[Se-2] Serbinov (A. N.), *Pribor. Tekh. Eksper.*, S. S. S. R., 1958, **3**, 39.
[Sk-1] Skurnik (E.), *Soc. Sc. Fenn., Comment. Phys. Math.*, 1957, **19**, n° 4.
[So-1] Sommeria (J.), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 555.
[Sw-1] Swingle (J. S.) et Swann (C. B.), *Rev. Sc. Instr.*, 1952, **23**, 636.
[Sw-2] Swingle (J. S.) et Swann (C. B.), *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1952, **27**, n° 3, 8.
[Sy-1] Symonds (J.), Univ. Birmingham, Angleterre, 1952. Non publié.
[Th-1] Thomas (E.), *Le Vide*, 1953, **8**, 1410.
[Th-2] Thonemann (P. C.), *Nature*, 1946, **158**, 61.
[Th-3] Thonemann (P. C.), Moffatt (J.), Roaf (D.) et Sanders (J. H.), *Proc. Phys. Soc.*, 1948, **61**, 483.
[Th-4] Thonemann (P. C.), Thèse de Ph. Doct., Université d'Oxford, 1949.
[Th-5] Thonemann (P. C.), *Progr. Nucl. Phys.*, 1953, **3**, 219.
[Th-6] Thonemann (P. C.) et Harrison (E. R.). A. E. R. E., rapport C. P./R-1190, 1953, Harwell.
[Wa-1] Ward (A. G.), *Helv. Phys. Acta*, 1950, **23**, 27.
[Wa-2] Ward (A. G.), *Phys. Rev.*, 1956, **81**, 119.

LETTRE A LA RÉDACTION

DISPOSITIF DE DÉTERMINATION SOUS VIDE DE LA CONDUCTIBILITÉ ÉLECTRIQUE ET DE LA CONSTANTE DE HALL DES LAMES MINCES MÉTALLIQUES ET SEMI-CONDUCTRICES

Par S. MARTINUZZI,
Laboratoire de Physique P. C. B.,
Faculté des Sciences, Alger.

Les lames minces dont on étudie les propriétés électriques sont préparées par évaporation thermique, dans l'enceinte d'un évaporateur permettant d'atteindre et de maintenir un vide de l'ordre de 10^{-6} mm de mercure.

1. **Appareillage.** — Il est représenté par la figure 1. Sur le support, où s'effectue la condensation de l'élément ou du composé étudié, sont préalablement dépo-

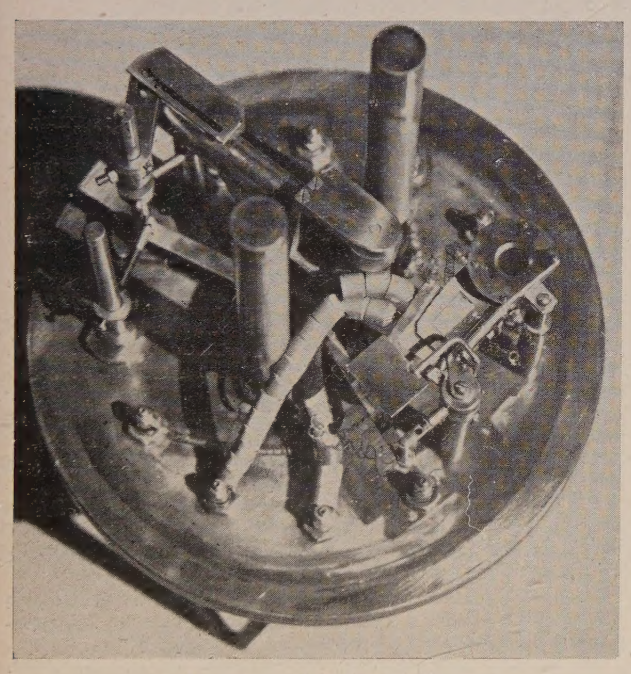


FIG. 1. — Le dispositif, sorti de l'enceinte après une évaporation.

sées par évaporation sous vide, des électrodes en argent [1]. Leur disposition géométrique est donnée par la figure 2. Elles permettent la détermination de la conductibilité électrique et de la constante de Hall, sous le vide de la préparation. A cet effet, un aimant permanent placé à l'intérieur de l'enceinte peut être assujetti de l'extérieur à un mouvement hélicoïdal discontinu alternant avec un mouvement de translation. Ce mécanisme sert à éloigner l'aimant de la lame pendant l'évaporation, ou à renverser le sens du champ magnétique.

Deux fours permettent, outre une variation de la température interne, le dégazage du support et de l'enceinte, ainsi que des recuits prolongés sous vide jusqu'à 200 °C.

Le premier, amovible, n'est utilisé que pour le dégazage du support : le second, constitué par deux cylindres de laiton contenant les résistances chauffantes, peut porter, à 200 °C, toute l'enceinte (dont les parois intérieures sont argentées, et les joints en néoprène ou du type SIL). Les températures sont évaluées par des couples chromel-alumel. Enfin la détermination de l'épaisseur des lames minces obtenues se fait par pesée à la microbalance d'une lamelle de verre témoin avant et après la projection.

2. **Technique des mesures.** — Le champ magnétique et le courant électrique utilisé sont continus. Les dimensions de la lame sont telles que le rapport longueur sur largeur soit égal à 3, ce qui simplifie les calculs de la constante de Hall (on se place pratiquement dans le cas du conducteur infini) [2].

La connaissance de l'intensité du courant traversant la lame, et de la tension aux bornes des électrodes 3 et 4 de la figure 2 donne la résistance électrique d'une

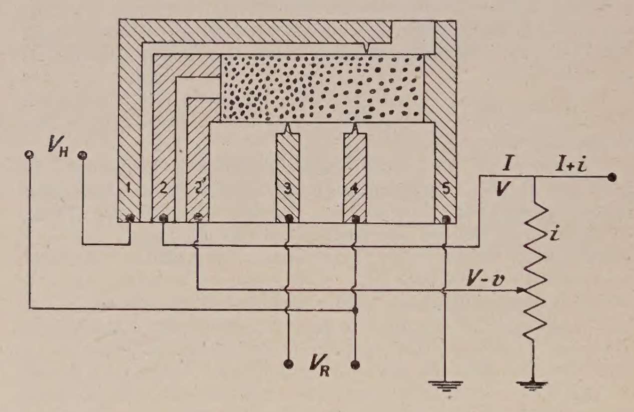


FIG. 2. — Disposition géométrique des électrodes et montage correctif de la tension de Hall proposé par Lambert.

longueur connue (1 cm) de la lame mince. Il est nécessaire d'effectuer chaque fois deux mesures en inversant le sens du courant.

Pour la constante de Hall, il suffit de mesurer l'intensité du courant, et la tension aux bornes des électrodes 1 et 4 de la figure 2. Mais il faut pouvoir éliminer les effets parasites IR-drop, Nernst, Ettinghausen, et Righi-Leduc. L'emploi de la méthode proposée par O. Lindberg [3], qui consiste en quatre mesures consécutives faites en inversant chaque fois, soit le sens du champ, soit le sens du courant, donne de bons résultats. Toutefois, comme les lames minces étudiées ont toujours des résistances élevées, l'effet IR-drop est très marqué et il convient de l'éliminer directement. La méthode proposée par Lambert [4], schématisée figure 2

est préférable à celle d'Aigrain [5], car elle permet cette élimination quelle que soit la résistance R 2, 2′ comprise entre les deux électrodes 2 et 2′ de la figure 2.

Ce dispositif est actuellement utilisé pour l'étude des lames minces d'arsenic, de gallium et d'arséniure de gallium.

Lettre reçue le 8 décembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Paparoditis (C.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 1526-1528.
[2] Welker (H.), *Elektrotechn.*, 1955, **76**, 15.
[3] Lindberg (O.), *Proc. of IRE*, Nov. 1952, 1414-1419.
[4] Lambert (G.), *L'onde électrique*, 1958, nos 337-338, 38.
[5] Aigrain (P.), *Annales de Radioélectricité*, janvier 1954, IX, 35.

REVUE DES LIVRES

Brun (E. A.), Martinot-Lagarde (A.), Mathieu (J.), **Mécanique des fluides.** Tome 1 : Généralités — Statique — Écoulements à une dimension — Conduites. (1 vol. 25/16 cm, 581 pages, Dunod, Paris, 1960, 58 N. F.)

Ce cours de mécanique des fluides s'adresse spécialement aux élèves des facultés des Sciences et des Grandes Écoles d'Ingénieur : il contient en particulier les éléments des certificats de Mécanique des fluides I et II institués par la nouvelle licence.

L'avertissement nous apprend qu'il est prévu 3 tomes qui traiteront plus spécialement :

Tome I. — Rappel des fondements de la mécanique, de la thermodynamique, de l'acoustique et de l'optique, envisagé du point de vue des applications à la mécanique des fluides. — Statique. — Écoulement à une dimension. — Pertes de charges dans les canalisations.

Tome II. — Écoulement à 2 dimensions et à potentiel de vitesse des fluides incompressibles. — L'aérodynamique des grandes vitesses dans les domaines subsoniques, supersoniques et hypersoniques. — Phénomènes de transport de quantité de mouvement, de chaleur et de masse, principalement ceux qui ont pour siège, la couche limite.

Tome III. — Méthodes de mesure et domaine d'application de la mécanique des fluides : machines hydrauliques, lubréfaction, entrainement des solides, aérosols, rhéologie, aéroélasticité.

Le tome I qui nous est présenté ici traite des généralités (chap. 1), de la statique (ch. 2), et des écoulements à une dimension (ch. 3).

Dans le chapitre 1, une longue partie est consacrée à la particule fluide, l'hypothèse de continuité et ses limitations (qui prennent une importance considérable en superaérodynamique). Toutes les grandeurs caractérisant les propriétés d'un fluide : compressibilité, dilatabilité, viscosité, conductibilité, diffusibilité, sont ensuite définies dans le cadre de leur utilisation future. Un bref rappel de la théorie cinétique des gaz permet de justifier au moins qualitativement les relations entre ces grandeurs caractéristiques et les grandeurs de base de la théorie cinétique. Après les rappels de mathématiques, de thermodynamique, des lois de similitudes et de leurs applications, l'auteur termine les généralités par la description et la justification sommaire des méthodes optiques classiques et récentes d'études expérimentales des écoulements. A la fin de chaque sous-chapitre sont rassemblées des séries d'exercices très simples qui allègent l'exposé principal et en facilitent la compréhension.

Le 2e chapitre du livre reprend l'exposé des notions classiques de statique des fluides. Il faut noter dans cette partie une série d'excellents exercices sur l'hydrostatique.

Le chapitre 3 reprend d'abord les équations générales de la dynamique, puis précise les cas où il est permis de ne considérer schématiquement qu'une variable d'espace, et avec quelle approximation.

Les écoulements unidimensionnels sont ensuite systématiquement étudiés :

— équation de Bernouilli et ses divers aspects. Une trentaine d'exercices suivent l'exposé de cette partie et permettront à l'élève de manier avec virtuosité l'équation de Bernouilli dans tous les cas possibles.

— équations de Saint Venant à masse volumique variable ;

— équations de Hugoniot et les écoulements subsoniques soniques et supersoniques dans les tuyères ;

— les écoulements avec frottements et transmission de chaleur (ondes de choc et de combustion) ;

— les écoulements dans les canaux ouverts qui trouvent ici logiquement leur place si l'on considère les analogies entre cet écoulement et celui des fluides compressibles dans les tuyaux.

Le dernier chapitre est consacré aux écoulements visqueux et aux différents types de régime de ces écoulements.

Pour l'ensemble de ce livre, plus de 200 exercices, tous extrêmement simples, mais test excellent pour l'élève de son assimilation active au cours. Cette présentation et cet effort porté par les auteurs sur le choix des exercices confère à cet ouvrage un intérêt pédagogique extrême.

S. Pauthier.

La théorie des gaz neutres et ionisés. (Cours de l'école d'été de physique théorique des Houches) 1 vol. relié de 469 pages, 17 × 24 cm, prix : 60 N. F. Hermann, Paris, 1960.

Il s'agit de recueil de cours, en langues anglaise et française, à l'usage des chercheurs, rendant compte des dernières et plus récentes recherches. Il ne s'agit pas d'un ouvrage pour étudiant, ni d'un ouvrage de culture générale. Voici la liste des articles :

Montroll (G. W.). — Questions de mécanique statistique des particules en interaction. I. Ensembles de Gibbs et fonction de partition. II. Théorie des intégrales d'amas (cluster). III. Théorie des phénomènes de transport. IV. Déplacements aléatoires dans les espaces discrets. V. Transitions de phase, problème d'Ising.

Van hove (L.). — Mécanique statistique des phénomènes de déséquilibre. (Équations de Boltzmann et de Pauli).

Delcroix (J. L.). — Théorie microscopique des gaz ionisés.

I. Fonctions de distribution simples et multiples. II. Anisotropie et moments de distribution simple. III. Équation d'évolution microscopique. IV. Étude des corrélations dans un plasma. V. Rayonnement des plasmas.

Kruskal (M. A.). — L'hydromagnétique et la théorie des plasmas dans un champ magnétique fort, et les principes d'énergie pour l'équilibre et la stabilité.

B) Théorie asymptotique de systèmes d'équations différentielles ordinaires avec toutes leurs solutions presque périodiques.

C) Amortissement de Landau.

Kaufman (A.). — Théorie du transport pour les plasmas I. Équations de Fokker-Planck. II. Coefficients de transport des plasmas. III. Électrons en fuite.

Denisse (J. F.). — Étude des ondes électromagnétiques dans les plasmas à partir de l'équation de Boltzmann.

Schatzmann (E.). — Les plasmas en astrophysique.

I. Écarts à l'équilibre thermodynamique local. II. Rayonnement d'un plasma. III. Champs magnétiques interstellaires. IV. Le soleil et les étoiles magnétiques.

J. Winter.